



ANISOTROPIE MAGNETIQUE PERPENDICULAIRE DES COUCHES MINCES EPITAXIEES D'ALLIAGES ORDONNES FePd

Véronique Sousa

► To cite this version:

Véronique Sousa. ANISOTROPIE MAGNETIQUE PERPENDICULAIRE DES COUCHES MINCES EPITAXIEES D'ALLIAGES ORDONNES FePd. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 1997. Français. NNT: . tel-00762134

HAL Id: tel-00762134

<https://theses.hal.science/tel-00762134>

Submitted on 6 Dec 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

présentée par

Véronique GEHANNO

pour obtenir le grade de DOCTEUR

de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

(arrêté ministériel du 30 mars 1992)

(Spécialité : Science et Génie des Matériaux)

ANISOTROPIE MAGNETIQUE PERPENDICULAIRE

DES COUCHES MINCES EPITAXIEES

D'ALLIAGES ORDONNES FePd

Date de soutenance : le Mardi 21 Octobre 1997

Composition du jury :

Monsieur	A. FERT	Président, Rapporteur
Madame	C. MEYER	Rapporteur
Messieurs	Y. BRECHET	
	B. CARRIERE	
	B. GILLES	
	A. MARTY	

Thèse préparée au sein du laboratoire Nanostructures et Magnétisme
Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée, CEA - GRENOBLE

À mes parents.

" Quand on partage deux pommes, chacun a une pomme.

Quand on partage deux idées, chacun a deux idées. "

vieux proverbe chinois

" Quand l'ordre chimique pointe son nez, l'aimantation redresse la tête. "

nouveau proverbe grenoblois (Alain Marty)

REMERCIEMENTS

*Je remercie Monsieur **Alain Bourret**, chef du Service de Physique des Matériaux et des Microstructures, et Messieurs **André Chambérod** et **Bernard Dieny**, chefs successifs du Laboratoire Nanostructures et Magnétisme, de m'avoir accueillie au sein de leur équipe. Je tiens à leur exprimer ici toute ma reconnaissance pour m'avoir offert, à plusieurs reprises au cours de mes trois années de thèse, la possibilité de participer à des conférences internationales.*

*Je remercie Monsieur **Albert Fert** de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse. Je lui témoigne ma gratitude, ainsi qu'à Madame **Claire Meyer**, pour avoir accepté d'être rapporteur. Messieurs **Yves Bréchet** et **Bernard Carrière** ont également pris part au jury. Que tous soient remerciés de l'intérêt qu'ils ont témoigné à l'égard de mon travail.*

*Je tiens à remercier sincèrement le duo de choc qui m'a initiée à la recherche et qui m'a communiqué sa passion pour ce travail. Un grand merci à **Bruno Gilles**, directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a témoignée tout au long de ces trois années. Merci également à **Alain Marty**, responsable CEA, envers qui mon admiration est immense, tant pour ses qualités scientifiques qu'humaines.*

*Je tiens à souligner ici que j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler sur différentes expériences, et ce plaisir, je le dois à toutes celles et ceux qui m'ont fait partager leurs connaissances. J'ai une pensée toute particulière pour le grand **Bernard Pras**, qui, entre deux ascensions du Moucherotte, sait parler aux atomes pour qu'ils se déposent en douceur. Je remercie **Mark Dynna**, **Thomas Walther**, **Cyril Dressler**, **Pascale Bayle**, **Jany Thibault** et **Jean-Luc Rouvière** qui ont toujours pris le temps de partager avec une novice leurs connaissances de la Microscopie Electronique en Transmission. Merci à **Isabelle Schuster**, **Joël Moulin** et **Pierre Blanc** pour leurs conseils éclairés sur la diffraction des rayons X. J'adresse également mes remerciements à **Christine Revenant-Brizard**, pour la réalisation des expériences de spectroscopie EXAFS, ainsi que pour sa persévérance face à l'analyse des données. Je remercie sincèrement **Luc Billard** pour avoir écrit le programme de simulation des configurations atomiques, grâce auquel les plus incrédules (dont je fais partie !) font maintenant confiance aux résultats de*

spectroscopie EXAFS. En ce qui concerne les résultats de Microscopie à Force Magnétique, je remercie vivement **Yves Samson** qui a eu l'obligeance de diffuser des images de domaines magnétiques dont la taille est celle prédite par les calculs... Un immense merci à **Pierrette Auric** pour la réalisation des expériences Mössbauer, et aussi pour son soutien moral dans les moments de doute. Merci encore à tous ceux que j'ai, un jour, mis à contribution : **Luiz Nagamine** pour des mesures de magnétométrie VSM, **Serge Testanière** et **Stéphane Auffret** pour des mesures de magnéto-résistance (pas si géante que ça finalement...), **Jean-Pierre Pezzetti** et **Raymond Longobardi** pour la fabrication des alliages FePd massifs, **Frédéric Lançon**, **Thierry Deutsch** et **Erwan Adam** pour la résolution efficace des problèmes informatiques ou mathématiques. Je remercie également **Peter Kamp** et **Michel Belakhovsky** pour l'enthousiasme communicatif qu'ils apportent à découvrir les ultimes secrets des alliages FePd.

Au cours de ce travail, j'ai eu la chance de pouvoir travailler en collaboration avec divers laboratoires. Je tiens à exprimer mes remerciements à mes voisins du CNRS, et plus particulièrement à **Gaetan Patrat**, du Laboratoire de Cristallographie, pour son enthousiasme à étudier les couches minces d'alliages FePd par diffraction de rayons X. Un grand merci également à **Yves Souche**, **Pierre Molho**, **Olivier Geoffroy**, **Jean-François Guillaud** et **Jean Voiron**, du Laboratoire Louis Néel, pour leur aide précieuse sur la caractérisation magnétique des couches minces. Merci également à **Claude Fermon**, du CEA-Saclay, pour la réalisation des nanostructures magnétiques. Merci aussi à **Peter Aitchinson** et **John Chapman**, de l'Université de Glasgow, pour les observations de microscopie Lorentz. Une pensée toute particulière s'envole vers l'autre bout du monde, vers **Katayama-san**, **Yuasa-san**, **Suzuki-san**, **Ando-san**, et mes autres amis du Laboratoire d'Electrotechnique de Tsukuba, grâce auxquels j'ai pu passer trois mois aussi riches en résultats scientifiques qu'en émotion. Arigato gosaimasu !

J'exprime enfin un grand merci à **Greg**, **Jean-Luc**, **Regina**, **Sophie**, **Marcelle**, **Eliane**, **Sonia** et toutes celles et ceux que j'ai eu la chance de côtoyer au cours de ces trois années, quotidiennement ou au hasard d'une conférence, et grâce à qui cette thèse restera parmi mes meilleurs souvenirs.

J'ai réalisé cette thèse dans le cadre d'un Contrat de Formation par la Recherche du CEA. Une aide financière, attribuée par la Région Rhône-Alpes, m'a permis d'effectuer un séjour de trois mois dans le Laboratoire d'Electrotechnique de Tsukuba, au Japon

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE	3
1) Contexte de l'étude	3
2) Plan du mémoire	9
CHAPITRE I.....	10
Elaboration des couches minces d'alliage FePd	10
A - Le système FePd : revue bibliographique.....	10
1) Propriétés de l'alliage FePd	10
2) Choix des conditions d'élaboration	13
B - L'élaboration en Epitaxie par Jets Moléculaires	15
1) Description du bâti	15
2) Les procédures de dépôt.....	19
3) Elaboration des couches minces : résumé	29
CHAPITRE II	30
Caractérisation structurale	30
A - Microscopie Electronique en Transmission.....	30
1) Description du microscope.....	30
2) Préparation des lames minces	30
3) Observations	31
4) Microscopie Electronique en Transmission : résumé	42
B - Diffraction des rayons X	43
1) Principe	43
2) Mesures	46
3) Diffraction des rayons X : résumé	52
C - Spectroscopie EXAFS	53
1) Principe	53
2) Mesures et analyse des spectres.....	55
3) Spectroscopie EXAFS : résumé.....	61
D - Ordre à Longue Distance (OLD) et Ordre à Courte Distance Directionnel (OCDD) : Discussion	62
1) Compatibilité et complémentarité de l'OLD et de l'OCDD.....	62
2) Interprétation de l'état d'ordre (OLD et OCDD) obtenu par les différentes procédures d'élaboration	66
3) OLD et OCDD : résumé.....	68
CHAPITRE II : CONCLUSION.....	69
CHAPITRE III.....	70
Caractérisation magnétique	70
A - Configuration magnétique des couches minces à anisotropie perpendiculaire : modélisation analytique	70
1) Direction de l'aimantation dans une couche mince et évaluation de la constante d'anisotropie uniaxiale effective.....	71
2) Calcul des profils d'aimantation en champ nul et expression de l'énergie de paroi	72
3) Expression de l'énergie totale dans le cas des matériaux à forte anisotropie uniaxiale ($K_u > 2\pi M_s^2$)	75

4) Expression de l'énergie totale dans le cas des matériaux à faible anisotropie uniaxiale ($K_u < 2\pi M_s^2$)	79
5) Domaines de fermeture	81
6) Modélisation analytique : résumé	83
B - Mesures d'aimantation	84
1) Principe	84
2) Aimantation à saturation	86
3) Cycles d'aimantation	87
4) Mesures d'aimantation : résumé	98
C - Imagerie des domaines magnétiques par Microscopie à Force Magnétique	100
1) Principe	100
2) Codépôt à 350°C (forte anisotropie)	101
3) Dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps (faible anisotropie)	106
4) Domaines magnétiques : résumé	111
D - Spectroscopie Mössbauer	112
1) Principe	112
2) Mesures et interprétation	114
3) Spectroscopie Mössbauer : résumé	123
E - Propriétés magnéto-optiques	124
1) Principe	124
2) Résultats expérimentaux	124
3) Discussion	128
4) Propriétés magnéto-optiques : résumé	129
CHAPITRE III : CONCLUSION	129
Conclusion Générale	130
1) Résultats acquis	130
2) Perspectives	132
ANNEXES	134
Annexe 1 - Propriétés de l'alliage FePd massif à la composition équiatomique : revue bibliographique	134
Annexe 2 - Systèmes d'unités c.g.s. et S.I.	136
Annexe 3 - Liste des symboles utilisés dans le texte	138
1) Paramètres caractérisant la dimension des couches minces et les propriétés physiques du matériau	138
2) Paramètres intervenant dans la modélisation des processus d'aimantation	138
Annexe 4 - Liste des fonctions mathématiques utilisées dans le texte	140
Annexe 5 - Modélisation micromagnétique	141
1) " l'effet de μ " sur l'énergie magnétique totale	141
2) Taille des domaines à l'équilibre et susceptibilité	143
Annexe 6 - Liste des publications	146
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	147

INTRODUCTION GENERALE

1) Contexte de l'étude

En 1956, IBM commercialisait le premier disque dur à mémoire magnétique. La densité d'information de ce système " Ramac " [NEE 83] était alors de 2000 bits/inch² * : la mémoire totale de 5 Mo était stockée sur 50 disques de diamètre 25 inch, si bien que cet ordinateur était plus grand qu'un réfrigérateur ! Aujourd'hui, IBM s'apprête à lancer sur le marché un disque dur à mémoire magnétique de 1.3 Gbits/inch² qui utilise trois disques de dimension 2.5 inch, permettant de stocker au total 2.2 Go d'informations... La densité d'enregistrement progresse toujours actuellement, au rythme de 60% par an [SIM 95], mais il existe une limite physique à la réduction de la taille du bit d'enregistrement : pour des tailles de domaines très petites vient se poser le problème des effets thermiques, qui peuvent déstabiliser l'aimantation dans la zone enregistrée, entraînant ainsi la perte de l'information [LAM 96]. Pour approcher cette limite physique et peut-être la dépasser, des études à caractère fondamental sont nécessaires : il s'agit de comprendre les lois qui régissent les phénomènes d'aimantation des entités magnétiques de petite taille. Ce domaine d'investigation est ouvert depuis peu à la curiosité des chercheurs grâce, d'une part, au développement des techniques de lithographies [CHA 88, ROU 92] qui permettent aujourd'hui de fabriquer des " plots " magnétiques de très petite dimension latérale (moins de 10 nm) et grâce, d'autre part, à l'apparition de nouvelles techniques de visualisation des domaines magnétiques comme la Microscopie à Force Magnétique [DAH 95], qui rendent possible l'observation des domaines de très petite taille.

Les chercheurs envisagent également des solutions pour repousser la limite posée par l'instabilité thermique. Aujourd'hui, la majorité des disques durs à mémoire magnétique utilise le principe de l'enregistrement longitudinal, c'est-à-dire que la direction de l'aimantation est orientée dans le plan du disque. Bien que des prototypes de média à haute densité, jusqu'à 10 Gbits/inch², aient été réalisés en enregistrement longitudinal par une équipe américaine du NISC [SIM 95], gagner un facteur 10 sur cette densité semble difficile à cause des problèmes d'instabilité thermique. Une solution possible est l'utilisation de média à aimantation perpendiculaire car dans cette configuration, les domaines magnétiques sont plus stables vis à vis de l'instabilité

* L'unité bits/inch² est habituellement utilisée pour mesurer les densités d'enregistrement :
1 inch = 0.0254 m.

thermique. Ce défi motive pour une part les études sur les matériaux possédant une anisotropie magnétique uniaxiale.

Les matériaux permettant de fabriquer des média à aimantation perpendiculaire sont d'autre part recherchés pour la technologie de l'enregistrement magnéto-optique [SUZ 96]. Cette technologie a été portée sur le marché à partir de 1988 et elle est promise à un brillant avenir, comme concurrent direct des disques souples. Dans ce domaine, les recherches actuelles visent également à augmenter les densités d'enregistrement. Pour cela, les efforts se portent sur les matériaux qui possèdent à la fois des propriétés magnéto-optiques performantes et une anisotropie magnétique uniaxiale. La configuration perpendiculaire de l'aimantation est en effet une condition requise dans cette technologie car le principe de lecture de l'information sur les média magnéto-optiques est basé sur l'effet Kerr polaire [PRO 95].

Les motivations des recherches sur les couches minces à aimantation perpendiculaire sont donc multiples. Une partie des efforts se porte sur la compréhension des phénomènes qui permettent de réaliser ce type de couches minces. Obtenir une couche mince à aimantation perpendiculaire n'est en effet pas immédiat, car dans une couche mince magnétique, l'aimantation tend spontanément à s'orienter dans le plan de la couche sous l'effet du champ démagnétisant [CHI 64]. Il existe différentes sources d'anisotropies uniaxiales qui permettent de fabriquer des couches minces à aimantation perpendiculaire : l'anisotropie de surface ou d'interface, les effets magnéto-élastiques, ou encore l'anisotropie uniaxiale de volume que présentent certains matériaux.

L'anisotropie uniaxiale peut donc tout d'abord provenir d'une anisotropie de surface ou d'interface [GRA 86]. A titre d'exemple, nous pouvons citer des couches minces de cobalt sur un substrat d'or [CHA 86] ou encore de fer sur un substrat de cuivre [LIU 88]. Dans ces deux cas, l'expérience montre que l'anisotropie d'interface dépasse l'énergie de champ démagnétisant. Cependant, comme la contribution de la surface diminue lorsque l'épaisseur de la couche mince augmente, l'obtention d'une couche mince à aimantation perpendiculaire est limitée aux couches de très faibles épaisseurs, de l'ordre de quelques plans atomiques seulement.

Les effets magnéto-élastiques peuvent également favoriser la direction perpendiculaire de l'aimantation. Dans le cas des tricouches Cu/Ni/Cu par exemple, ces effets permettent d'étendre jusqu'à 14 nm le domaine d'épaisseur pour lesquelles l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince [HUG 96].

Pour obtenir des couches minces à aimantation perpendiculaire aux plus fortes épaisseurs, il est possible d'utiliser l'anisotropie magnéto-cristalline uniaxiale de volume que possèdent certains matériaux. Cela nécessite la maîtrise de la croissance de la couche mince, puisqu'il faut obtenir l'alignement de l'axe de facile aimantation suivant la direction normale au plan de la couche mince. Bien que cette condition semble contraignante, l'expérience montre que ceci est possible avec différents types de matériaux. Nous pouvons citer à titre d'exemple les grenats, le cobalt, certains matériaux à base de métaux de terres rares, ou les alliages métalliques ordonnés.

Les grenats sont des matériaux à anisotropie magnéto-cristalline uniaxiale célèbres dans le domaine des couches minces à aimantation perpendiculaire. Ils constituent la base de la technologie des mémoires magnétiques à bulles [ESH 81]. Le principe de cette technologie repose sur la possibilité de stabiliser des bulles magnétiques dans une couche mince à aimantation perpendiculaire, c'est-à-dire des domaines magnétiques cylindriques où l'aimantation adopte la direction opposée au milieu. L'information de type binaire est alors représentée par la présence ou l'absence d'une bulle. Les grenats ont été proposés en tant que support des mémoires à bulles en 1967 par les Laboratoires Bell Telephone [BOB 67]. Malgré des temps d'accès à l'information plus longs que pour les mémoires à semi-conducteurs, les mémoires à bulles permettent de stocker l'information à un moindre coût [NEE 83], c'est pourquoi elles ont été développées pour le stockage de masse et leur commercialisation a débuté en 1975 [ESH 81]. Avant d'être utilisés, les grenats ont été le sujet d'une recherche fondamentale pendant de longues années et ces matériaux ont motivés le développement de modèles pour rendre compte de la configuration en domaines magnétiques des couches minces à aimantation perpendiculaire [KOO 60]. Ces modèles sont encore aujourd'hui utilisés avec succès pour d'autres matériaux à anisotropie uniaxiale, comme par exemple récemment dans le cas du cobalt [HEH 97a].

Le cobalt est en effet un exemple également célèbre de matériau à anisotropie uniaxiale, permettant de fabriquer des couches minces à aimantation perpendiculaire. Des disques durs à aimantation perpendiculaire, fabriqués à base de cobalt additionné de chrome, sont opérationnels aujourd'hui et dans ce cas, l'anisotropie uniaxiale est renforcée par une croissance colonnaire perpendiculaire au plan du disque [LOD 95]. Le cobalt est un matériau très largement utilisé aujourd'hui pour la fabrication des média d'enregistrement magnétique, qu'ils soient à aimantation perpendiculaire ou longitudinale [DOE 96], voire même oblique [ONO 96]. Mais le cobalt est aussi un matériau prometteur pour les média du futur à haute densité d'enregistrement, c'est pourquoi il est toujours le sujet de nombreuses études de recherche fondamentale. Citons à

titre d'exemple les travaux récents concernant la visualisation des domaines magnétiques d'une largeur de quelques dizaines de nanomètres, dans des couches continues de cobalt [HEH 96a]. Ce travail a été possible grâce aux performances de la Microscopie à Force Magnétique qui permet de visualiser des domaines magnétiques de très petite taille. La Microscopie à Force Magnétique a également permis d'étudier la stabilité de l'aimantation dans des plots submicroniques de cobalt [HEH 96b]. Le cobalt suscite par ailleurs l'intérêt de la communauté scientifique pour la fabrication de structures multicouches qui présentent une anisotropie perpendiculaire : Co/Au [LEE 89, SUG 92], Co/Pd [CAR 85] et surtout Co/Pt [ZEP 89, LEE 90, SUG 92, BEL 97a]. Ce dernier système est très prometteur pour l'enregistrement magnéto-optique car en plus d'une anisotropie magnétique perpendiculaire, il présente des propriétés magnéto-optiques performantes [ZEP 89].

Les matériaux utilisés actuellement pour les supports d'enregistrement magnéto-optique sont des alliages à base de métaux de terres rares [SUZ 96]. L'alliage TbFeCo est par exemple utilisé pour les média magnéto-optiques aujourd'hui sur le marché, qui opèrent avec des lasers rouges (longueur d'onde 780 nm, énergie 1.6 eV). Pour augmenter les densités d'enregistrement de ces supports, les recherches actuelles visent à découvrir des matériaux pouvant fonctionner à des longueurs d'onde plus petites, et ces recherches sont liées à la mise au point des lasers bleus (longueur d'onde 429 nm, énergie 2.9 eV). C'est dans ce contexte que les multicouches Co/Pt sont particulièrement prometteuses [ZEP 89].

Une autre catégorie de matériaux à anisotropie uniaxiale a été envisagée comme média pour l'enregistrement magnéto-optique à haute densité. Il s'agit des alliages métalliques chimiquement ordonnés. Prenons l'exemple d'un alliage binaire A-B. Dans certains systèmes métalliques, il existe une phase ordonnée constituée d'une alternance de plans d'atomes A et de plans d'atomes B. Cette structure possède une anisotropie magnétique uniaxiale : l'axe de facile aimantation est perpendiculaire à la direction d'empilement des plans A et B. L'énergie d'anisotropie engendrée par ce type de mise en ordre chimique est en général très élevée et elle peut dépasser l'énergie de champ démagnétisant. Dans ce cas, si l'on parvient à élaborer des couches minces de l'alliage ordonné avec la direction d'empilement des plans alignée sur la direction normale à la couche mince, alors l'aimantation sera perpendiculaire (Fig. 1). Par contre, dans une couche mince de l'alliage désordonné, l'aimantation sera dans le plan, sous l'effet du champ démagnétisant (Fig. 2).

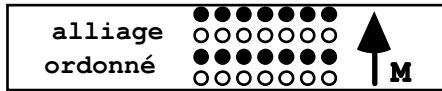


Fig. 1 : Schéma d'une couche d'alliage A-B totalement ordonné suivant la normale au plan. Grâce à la mise en ordre chimique, l'aimantation M est perpendiculaire au plan de la couche.

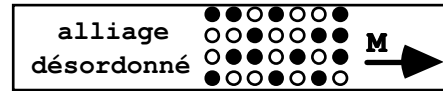


Fig. 2 : Schéma d'une couche d'alliage A-B désordonné. L'effet de forme de couche mince conduit à une aimantation M planaire.

Des couches minces d'alliages métalliques ordonnés présentant une aimantation perpendiculaire ont pu être obtenues dans différents systèmes et plusieurs modes d'élaboration sont reportés dans la littérature. Dans le système Fe-Pt, la mise en ordre souhaitée a pu être obtenue par codéposition en température (jusqu'à 500°C) des éléments purs [CEB 94], ou par recuit (jusqu'à 675°C) de multicouches (Fe/Pt)_n [LAI 93], ou encore par l'élaboration artificielle d'un super-réseau (Fe₁/Pt₁)_n [MIT 95, MIT 96]. Ce dernier type d'élaboration est en effet possible puisque de nos jours, les dépôts réalisés par la technique d'Epitaxie par Jets Moléculaires peuvent être contrôlés à la monocouche près. La possibilité d'élaborer artificiellement la phase ordonnée par ce procédé a par ailleurs permis d'obtenir des couches minces à aimantation perpendiculaire dans un système comme Fe-Au où la phase ordonnée est métastable [TAK 95, MIT 96]. Dans les systèmes cités, les auteurs corrélient l'existence de l'anisotropie uniaxiale à la présence d'un ordre à longue distance, c'est-à-dire une différence de composition moyenne en atomes A et B entre deux plans atomiques successifs. Dans le système Co-Pt, plusieurs études ont montré que l'obtention d'un ordre local anisotrope, c'est-à-dire la nature chimique des proches voisins, suffit à obtenir l'anisotropie perpendiculaire recherchée [TYS 96, MAR 97].

Les alliages métalliques ordonnés s'avèrent potentiellement très intéressants pour l'enregistrement magnéto-optique car en plus de l'anisotropie perpendiculaire, la mise en ordre chimique s'accompagne d'une augmentation de la rotation Kerr [WEL 92, LAI 93, CEB 94]. Dans ce contexte, l'alliage FePd est un bon candidat : d'une part, la phase ordonnée est stable du point de vue de la thermodynamique [KUB 82] et l'anisotropie uniaxiale dépasse le champ démagnétisant [MIY 90] ; d'autre part, des prédictions théoriques laissent percevoir des propriétés magnéto-optiques performantes dans le domaine des faibles longueurs d'onde [OST 94]. Malgré ces prédispositions, l'alliage FePd n'a jamais été étudié en couche mince, à notre connaissance.

En revanche, beaucoup d'études concernent les multicouches Fe/Pd. Ces études sont motivées par les propriétés magnétiques particulières de ces super-réseaux. Le palladium est un matériau dont la susceptibilité est très élevée : des calculs montrent même que le palladium devient ferromagnétique si l'on suppose une dilatation de son réseau de 5% [MOR 89, CHE 89]. Cette particularité motive les études de couches minces de palladium épitaxiées. Des moments induits, s'élevant jusqu'à $0.4 \mu_B$ par atome Pd, ont ainsi pu être mesurés à l'interface Fe/Pd [BLA 92, RAD 93, STO 94, FUL 95, LEC 95, CRO 97]. Le second type d'études entreprises sur les multicouches Fe/Pd concerne la nature du couplage magnétique entre les couches de fer à travers la couche de palladium. Un couplage antiferromagnétique est en effet prédit par les calculs [GAR 91, STO 94, FUL 95] mais expérimentalement, son existence semble dépendre des contraintes et de la rugosité d'interface. Ces arguments expliqueraient des résultats apparemment contradictoires : le couplage antiferromagnétique a été observé pour des multicouches Fe/Pd déposées sur un substrat d'argent [CEL 91b] mais il n'a pas pu être mis en évidence pour des multicouches Fe/Pd déposées sur un substrat d'oxyde de magnésium [HIC 94]. L'enjeu de ce débat est d'importance car le couplage antiferromagnétique constitue la base de la propriété de magnéto-résistance géante qui a notamment révolutionné la technologie des têtes de lecture au début des années 1990 [BRU 96] : grâce à l'introduction des têtes de lecture fonctionnant sur ce principe, le rythme de l'augmentation de la densité d'enregistrement est passé de +23% à +60% par an [SIM 95]. Cet exemple illustre le fait que l'augmentation des densités d'enregistrement ne passe pas seulement par le développement des média, mais également par l'amélioration de tous les éléments entrant dans la technologie de l'enregistrement. La recherche sur les matériaux magnétiques contribue au développement des média comme à celui des têtes de lecture.

Dans ce contexte, l'étude des multicouches FePd/Pd est donc prometteuse, l'idée étant d'ajuster le paramètre de maille avec la composition de la couche d'alliage FePd pour obtenir des super-réseaux de meilleure qualité cristalline que ne le sont les super-réseaux Fe/Pd. Mais avant la réalisation de ces structures FePd/Pd, une étude préliminaire sur la croissance de l'alliage en couche mince s'impose.

Les motivations de l'étude des couches minces d'alliage FePd, entreprise au Laboratoire Nanostructures et Magnétisme, sont donc multiples. Une idée directrice a plus particulièrement guidé notre travail, tout au long de cette thèse : contribuer à la compréhension de l'origine de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les systèmes d'alliages métalliques ordonnés. L'une des questions à laquelle nous souhaitons apporter

des éléments de réponse est la suivante : quel est le paramètre pertinent qui permet de caractériser le degré d'ordre de l'alliage et de rendre compte de l'anisotropie magnétique ?

2) Plan du mémoire

Nous nous sommes intéressés à l'anisotropie perpendiculaire induite par la mise en ordre chimique dans des couches minces d'alliage équiatomique FePd(001). Nous avons élaboré des couches minces d'alliage par Epitaxie par Jets Moléculaires suivant les différentes méthodes envisagées pour obtenir la mise en ordre : par codéposition à température ambiante, suivie éventuellement d'un recuit, par codéposition à chaud et par dépôt alterné de couches atomiques de fer et palladium. Le **chapitre I** de ce mémoire détaille les conditions d'élaboration ainsi que les premières informations structurales obtenues par analyse des échantillons in situ.

Nous avons ensuite entrepris la caractérisation de l'état d'ordre obtenu dans les couches minces d'alliage, élaborées suivant différentes procédures, et nous nous sommes attachés à mesurer l'ordre à longue distance ainsi que l'ordre à courte distance directionnel. Il nous a aussi paru important de caractériser les défauts cristallins présents dans les couches minces, car ceux-ci peuvent influencer les propriétés magnétiques [ZHA 92, KLE 95]. Le **chapitre II** présente les résultats de la caractérisation structurale des échantillons.

Enfin, nous avons mesuré les propriétés magnétiques des couches minces, à commencer bien sûr par leur anisotropie uniaxiale. Nous avons étudié la configuration en domaines magnétiques. Nous avons également mesuré les propriétés magnéto-optiques des couches minces. Les résultats de la caractérisation magnétique sont présentés au **chapitre III** de ce mémoire.

CHAPITRE I

Elaboration des couches minces d'alliage FePd

A - Le système FePd : revue bibliographique

1) Propriétés de l'alliage FePd

a) L'alliage FePd à l'état massif

Le diagramme de phase du système Fe-Pd [KUB 82] est présenté sur la figure I.1. Il fait apparaître une solution solide désordonnée de structure cubique à faces centrées (Fig. I.2-a), dite γ , dans tout le domaine de composition à haute température. Le système Fe-Pd a été très étudié car autour de la composition $\text{Fe}_{70}\text{Pd}_{30}$, l'alliage γ trempé a la propriété remarquable d'avoir un très faible coefficient d'expansion thermique [KUS 62]. Ce type de matériaux, dénommé Invar, a des applications dans de nombreux domaines technologiques, notamment en métrologie. L'autre particularité du diagramme de phase du système Fe-Pd concerne l'existence de deux phases ordonnées : la phase FePd, structure ordonnée de type $L1_0$ (Fig. I.2-b) et la phase FePd_3 , structure ordonnée de type $L1_2$ (Fig. I.2-c).

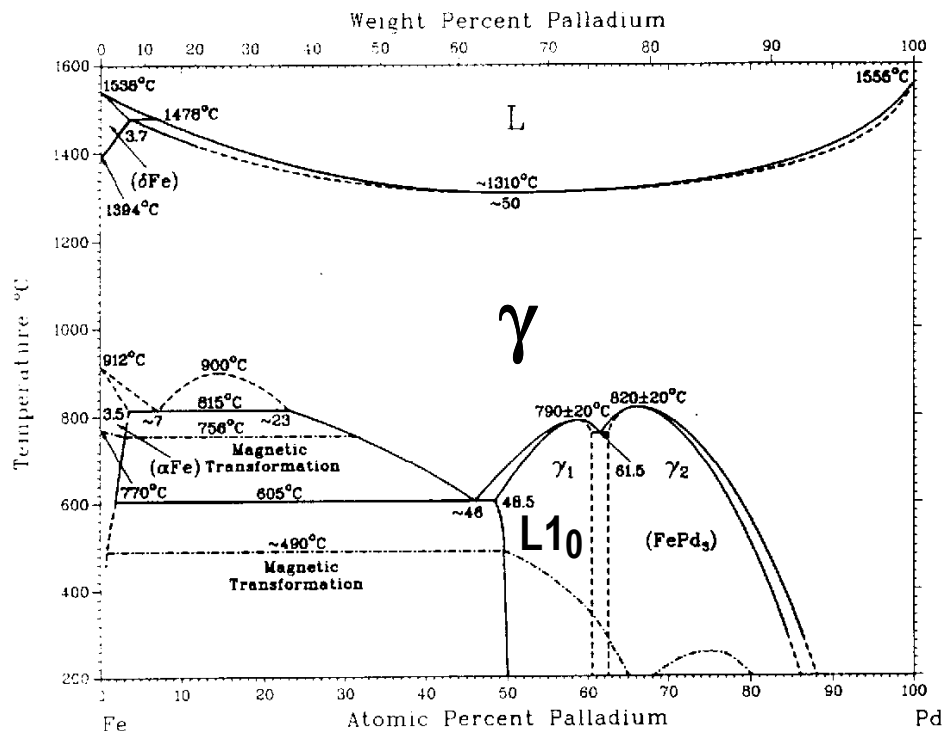
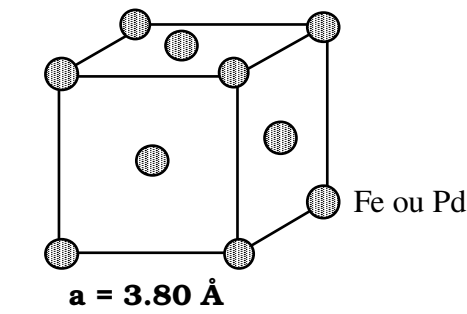
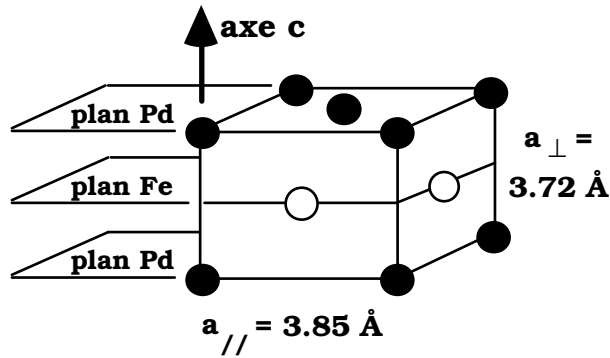


Fig. I.1 : Diagramme de phase du système FePd [KUB 82].

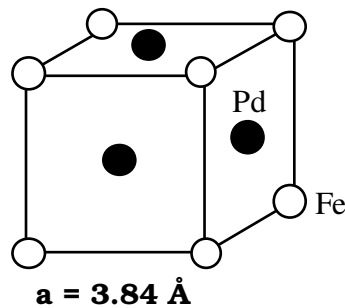


(a) $Fe_{1-x}Pd_x$ phase désordonnée γ

La probabilité d'occupation d'un site par un atome Fe (resp. Pd) est égale à $1-x$ (resp. x).



(b) $FePd$ phase ordonnée de type $L1_0$



(c) $FePd_3$ phase ordonnée de type $L1_2$

Fig. I.2 : Schéma des différentes structures dans le système Fe-Pd ; les atomes de fer (notés Fe) et palladium (notés Pd) sont représentés respectivement en blanc et noir. (a) structure désordonnée γ (réseau cubique à faces centrées), (b) structure ordonnée de type $L1_0$ (réseau de sites tétragonal à faces centrées ; la structure est constituée d'une alternance de plans Fe purs et Pd purs) et (c) structure ordonnée de type $L1_2$ (réseau de sites cubique à faces centrées ; les atomes Pd sont au centre des faces du cube et les atomes Fe aux sommets du cube).

Notre travail concerne plus particulièrement l'étude de couches minces d'alliage FePd de composition équiatomique. Nous avons regroupé dans l'annexe 1 quelques données de la littérature (ainsi que les références correspondantes) concernant les propriétés de l'alliage massif Fe₅₀Pd₅₀ de structure désordonnée γ et ordonnée de type L1₀.

La phase γ désordonnée (Fig. I.2-a) est de structure cubique à faces centrées et son paramètre de maille est $a=3.80 \text{ \AA}$ [PEA 64]. Cette phase est ferromagnétique, et la température de Curie de l'alliage obtenu par trempe est voisine de 430°C (la phase désordonnée est métastable à cette température). La direction de facile aimantation est la direction cristallographique [111] : $K_1 \approx -10^4 \text{ erg / cm}^3$. L'aimantation à saturation est de l'ordre de 1070 emu/cm³ à température ambiante.

La phase ordonnée, de type L1₀, est constituée d'une alternance de plans Fe purs et Pd purs, le réseau de sites étant une structure cubique à faces centrées (Fig. I.2-b). Ses paramètres de maille sont $a_{//}=3.85 \text{ \AA}$ et $a_{\perp}=3.72 \text{ \AA}$ [PEA 64]. Cette phase est également ferromagnétique avec une température de Curie voisine de 470°C. Cette phase possède une anisotropie magnétique uniaxiale : l'axe de facile aimantation est l'axe de symétrie d'ordre 4, noté c dans la suite de ce mémoire. Les données de la littérature concernant la constante d'anisotropie uniaxiale K_u varient entre $17 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$ et $30 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$. La dispersion de ces valeurs résulte probablement des différences dans le degré d'ordre des échantillons étudiés par les auteurs. L'aimantation à saturation M_s varie entre 1090 emu/cm³ et 1120 emu/cm³. Nous remarquons donc dès à présent que l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline dépasse l'énergie de champ démagnétisant d'une couche mince ($2\pi M_s^2 = 7 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$) : si l'on parvient à obtenir l'alliage sous la forme ordonnée L1₀, avec un empilement de plans de fer et de palladium le long de la normale au plan de la couche mince, alors l'aimantation sera perpendiculaire.

A la composition équiatomique, la transition ordre-désordre a lieu vers 600°C. La figure I.3 représente le diagramme TTT de l'alliage fer-palladium massif donnant la fraction volumique de phase ordonnée dans un échantillon initialement désordonné, en fonction de la température et de la durée de recuit [GUS 87]. Ce diagramme montre que la mise en ordre est la plus rapide pour une température voisine de 550°C : dans ces conditions, 90% en volume de l'échantillon est formé de la phase ordonnée après une heure de recuit.

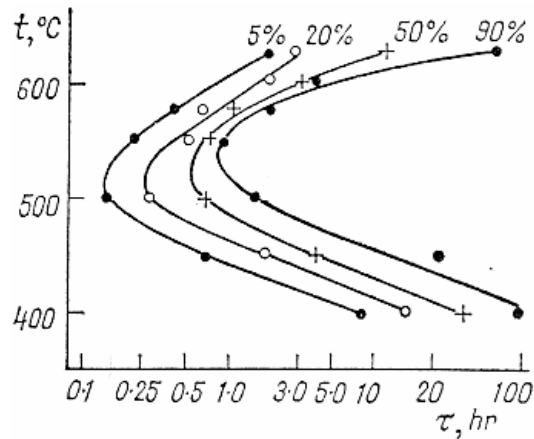


Figure 1.3 : Diagramme TTT de l'alliage FePd massif donnant la fraction volumique de phase ordonnée dans l'échantillon, en fonction de la température (t) et de la durée (τ) de recuit [GUS 87].

b) Le système Fe-Pd en couche mince

Comme nous l'avons déjà mentionné en introduction, les études concernant le système Fe-Pd en couche mince sont relatives à des super-réseaux Fe/Pd. Bien que ces travaux ne concernent pas l'alliage FePd, ils nous renseignent toutefois sur le mode de croissance des métaux purs. Par exemple, pour des couches épitaxées dont la direction cristallographique [001] est alignée sur la normale au plan de la couche mince, il apparaît que le palladium croît sur le fer dans un mode couche par couche [CEL 91a, RAD 93]. La croissance du fer sur le palladium semble plus délicate et fortement dépendante des conditions de dépôt. Par exemple, Quinn et al. [QUI 91] montrent que le fer croît sur la surface de palladium [001] sous la forme d'îlots pseudomorphes pour les faibles vitesses de dépôt inférieures à $10 \text{ \AA}/\text{min}$, alors que la croissance n'est plus pseudomorphe pour les vitesses de dépôt plus élevées. Des super-réseaux Fe/Pd de grande qualité cristalline ont tout de même pu être obtenus par dépôt à 80°C sur des substrats d'oxyde de magnésium, sans couche tampon [CHI 94].

2) Choix des conditions d'élaboration

Notre objectif est d'obtenir des couches minces d'alliage FePd dont l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche, grâce à l'anisotropie uniaxiale induite par une mise en ordre chimique de type $L1_0$. Pour maximiser l'anisotropie perpendiculaire, il s'agit d'obtenir un degré d'ordre chimique élevé, avec un seul des trois variants de la

phase ordonnée : celui correspondant à l'axe c aligné suivant la normale au plan de la couche mince.

Pour atteindre cet objectif, nous avons choisi de déposer les couches minces d'alliage sur des couches tampon de palladium. Le palladium est de structure cubique à faces centrées, avec un paramètre de maille $a=3.89 \text{ \AA}$ [PEA 64]. La minimisation des contraintes épitaxiales favorise donc le variant de la phase ordonnée avec l'axe c suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche mince, par rapport aux deux autres variants de la phase ordonnée et également par rapport à la phase désordonnée γ .

Nous avons envisagé différentes procédures d'élaboration des couches minces d'alliage. Nous avons tout d'abord réalisé des couches minces par codéposition de l'alliage à différentes températures, en restant dans le domaine de température pour lequel c'est la phase ordonnée qui est stable, c'est-à-dire des températures inférieures à 600°C . Nous avons envisagé une procédure de recuit des couches minces codéposées à température ambiante. Nous avons également entrepris la croissance artificielle de la structure ordonnée par des dépôts alternés de monocouches de fer et de palladium.

B - L'élaboration en Epitaxie par Jets Moléculaires

1) Description du bâti

Le bâti d'Epitaxie par Jets Moléculaires, de la marque Riber, est composé de plusieurs chambres à ultra-vide interconnectées, dont font partie la chambre d'introduction des échantillons et la chambre de dépôt. Les échantillons sont fixés par de l'indium sur des supports en molybdène, dénommés " molyblocs " et le transfert de ces molyblocs entre les chambres s'effectue à l'aide de cannes magnétiques. L'introduction des échantillons dans le bâti se fait par l'intermédiaire d'un " sas d'introduction rapide ". Pendant cette opération, l'ultra-vide est préservé dans le corps principal du bâti. Lors des dépôts, le maintien de l'ultra-vide dans la chambre d'élaboration est assuré par une pompe ionique et un sublimateur de titane ; la pression de base est alors 10^{-7} Pa. La chambre d'introduction est équipée d'un four utilisé pour dégazer les substrats avant les dépôts.

- La chambre de dépôt

La chambre de dépôt (Fig. I.4) est équipée de deux évaporateurs à bombardement électronique : le premier porte une charge de palladium, le second une charge de fer. Pour homogénéiser la surface des charges et obtenir un flux de matière constant, il est possible d'effectuer un balayage du faisceau d'électrons sur les charges pendant le dépôt, grâce à un système de déflexion magnétique. Cependant, ce balayage perturbe le signal RHEED et il doit donc être interrompu pendant l'enregistrement des oscillations d'intensité RHEED dont le principe est décrit ci-après. En condition de dépôt, l'échantillon est placé sur un manipulateur situé au centre de la chambre. Les sources de fer et de palladium sont situées à une distance de 300 mm de l'échantillon ; l'angle d'incidence des flux atomiques sur la surface de l'échantillon est de 20° .

Les flux de matière sont mesurés et régulés par deux balances à quartz. En calibrant les flux avant chaque nouveau dépôt, la précision obtenue sur la composition de l'alliage déposé atteint quelques pour-cent. La méthode de calibration des flux consiste à déposer les éléments purs, c'est-à-dire Fe et Pd dans notre cas, et à mesurer la période des oscillations RHEED, qui donne la vitesse de dépôt en nombre de couches atomiques déposées par seconde. Nous pouvons ensuite en déduire la vitesse de croissance à partir de la connaissance des paramètres de maille.

Le manipulateur est équipé d'un four qui permet d'effectuer des dépôts en température, jusqu'à 500°C . La température est déterminée à partir de la puissance communiquée au four, qui a été préalablement calibrée par un thermocouple en contact

sur le molybloc. En raison de la difficulté de mesurer une température sous ultra-vide, la précision sur la valeur absolue de la température, évaluée à $\pm 20^\circ\text{C}$, n'est pas très bonne. Cependant, en suivant toujours la même procédure de stabilisation de la température (attente d'environ une heure), celle-ci est reproductible.

Un cache motorisé peut être avancé devant l'échantillon en cours de dépôt pour permettre notamment l'élaboration d'échantillons à gradient d'épaisseur, ou "échantillons en coin". L'espace entre l'échantillon et le cache est de l'ordre du millimètre : il est donc négligeable devant la distance échantillon-source de fer ou de palladium, ce qui limite les effets de pénombre. De plus, le bord du cache est parallèle au plan formé par les deux sources et l'échantillon, ce qui élimine les effets d'ombre différentielle.

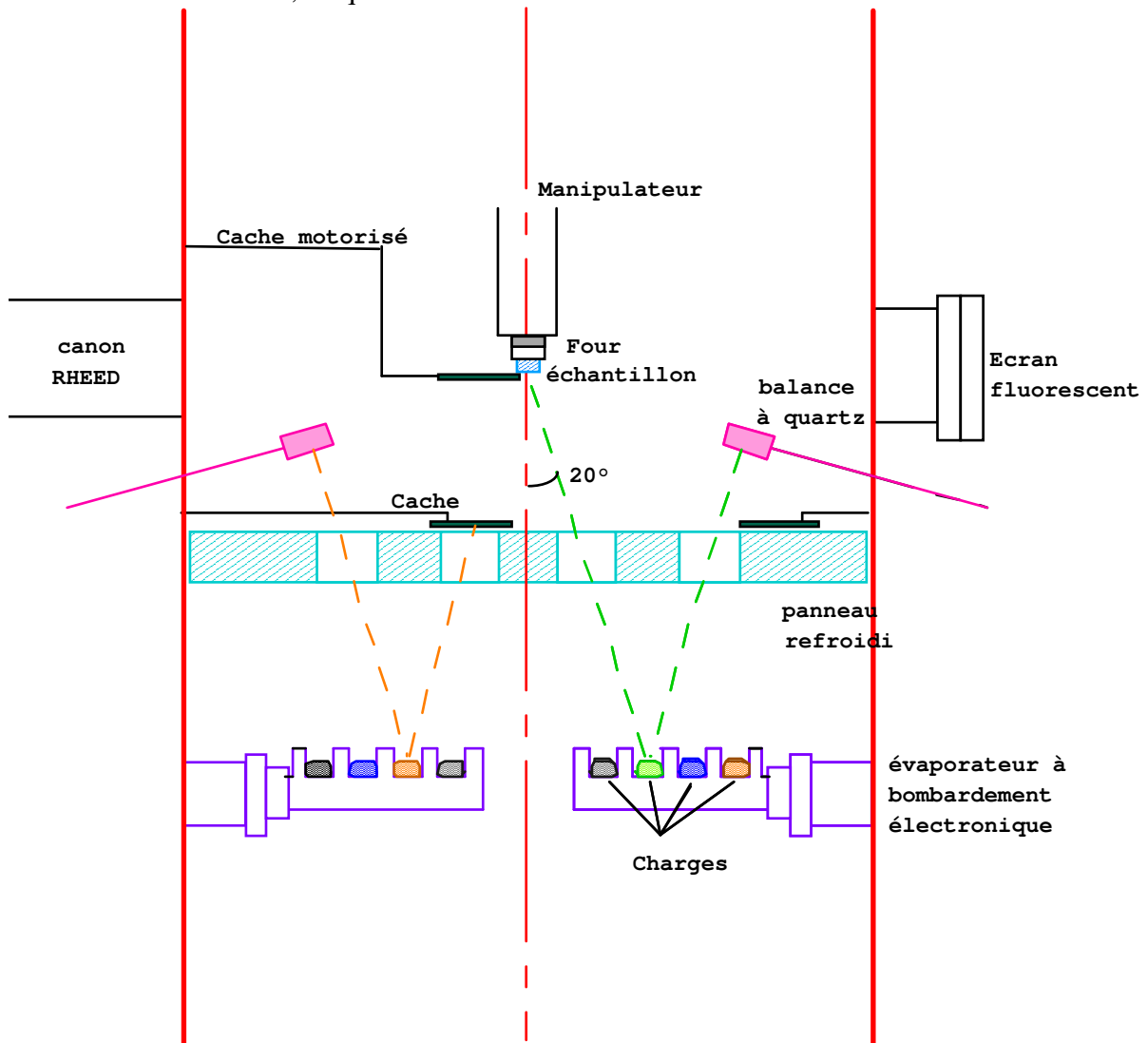


Fig. I.4 : Schéma de la chambre de dépôt, en vue de côté.

- Les diagrammes de diffraction RHEED

La chambre de dépôt est équipée d'un système de caractérisation RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction). Un faisceau d'électrons de haute énergie (dans notre cas, 40 kV) est focalisé sur la surface de l'échantillon et réfléchi sur un écran fluorescent. L'incidence du faisceau d'électrons est rasante : l'angle d'incidence vaut typiquement 1° à 5° . Le signal mesuré provient donc essentiellement de la surface de l'échantillon, plus précisément des premières couches atomiques. Plusieurs types d'informations peuvent être déduites de ce signal.

Si la surface de l'échantillon est cristalline, nous mesurons un diagramme de diffraction. L'étude de ce diagramme de diffraction suivant plusieurs azimuts de l'échantillon permet de déterminer la relation d'épitaxie de la couche mince sur son substrat. De plus, l'allure de ce diagramme, qui est constitué de taches ou de tiges, donne une indication sur la rugosité de la surface [MAH 90]. Dans le cas d'une surface monocristalline idéalement lisse, le réseau réciproque est constitué de tiges très fines et leur intersection avec la sphère d'Ewald conduit à un diagramme formé de taches de diffraction placées sur un arc de cercle (Fig. I.5-a). Cependant, dans la réalité, les tiges de diffraction du réseau réciproque sont élargies. Ceci résulte principalement de la qualité cristalline imparfaite de l'échantillon. En conséquence, expérimentalement, le diagramme de diffraction d'une surface lisse est constitué de tiges (Fig. I.5-b). Si la surface est rugueuse, c'est-à-dire constituée d'îlots, on retrouve le diagramme de diffraction d'objets tridimensionnels formé par des taches de diffraction (Fig. I.5-c et -d).

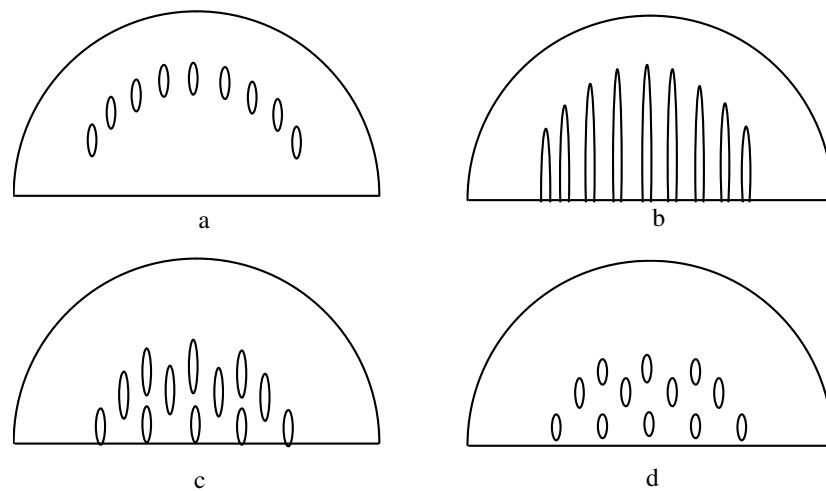


Fig. I.5 : Diagramme de diffraction schématique (a) d'une surface parfaitement lisse dans des conditions de diffraction idéales (b) d'une surface lisse dans des conditions de diffraction réelles (c) d'une surface peu rugueuse (d) d'une surface très rugueuse.

- Les oscillations d'intensité RHEED

Le signal RHEED fournit également des informations sur le mode de croissance des couches minces. Nous étudions pour cela les variations d'intensité spéculaire en cours de croissance. Un maximum d'intensité spéculaire est attendu lorsque la rugosité de surface est minimale. Les variations de cette intensité sont sensibles à des rugosités d'une monocouche atomique, si bien qu'une croissance en "couche par couche" se traduit par des oscillations de l'intensité spéculaire de période égale à une monocouche d'atomes déposés. En effet, à la complétion d'une couche atomique, la surface est lisse et l'intensité réfléchie est maximale ; lorsqu'une demi-couche d'atomes supplémentaire est déposée, la rugosité est maximale et l'intensité réfléchie est minimale. Ces oscillations permettent de contrôler le dépôt d'une monocouche atomique et sont utilisées pour fabriquer artificiellement des super-réseaux de semi-conducteurs par exemple, suivant la méthode dénommée "phase-locked epitaxy" [SAK 85]. Cette méthode consiste à déposer alternativement les éléments purs en changeant d'élément tous les $n^{\text{ièmes}}$ maxima d'intensité spéculaire. Elle a été plus récemment appliquée au cas des alliages métalliques : les structures ordonnées sont artificiellement fabriquées par le dépôt alternatif des éléments purs en changeant d'élément à chaque maximum d'intensité spéculaire. Elle s'est révélée particulièrement utile dans des systèmes comme AuNi [DYN 97] ou AuFe [TAK 95], car elle a permis de fabriquer des phases ordonnées métastables. Cependant, on observe expérimentalement un amortissement des oscillations au cours du dépôt car la croissance n'est jamais idéalement bidimensionnelle. L'épaisseur des couches fabriquées par la méthode "phase-locked epitaxy" est donc limitée à une dizaine de nanomètres dans nos conditions de dépôt.

Le bâti d'épitaxie que nous avons utilisé est équipé pour élaborer des couches minces suivant cette méthode (Fig. I.6). Le diagramme de diffraction RHEED sur l'écran fluorescent est repris par une caméra CCD, et le signal est retransmis sur un écran vidéo. L'intensité spéculaire est mesurée en cours de dépôt par une cellule optique placée sur cet écran et elle est enregistrée par un ordinateur, à une fréquence voisine de 9 Hz. Le programme de traitement des données ajuste une fonction parabolique sur les huit dernières valeurs d'intensité RHEED enregistrées et détermine l'arrivée du maximum. Il commande l'arrêt du dépôt par fermeture du cache devant l'évaporateur lorsque le maximum d'intensité est atteint.

Nous avons choisi d'enregistrer les oscillations lorsque le faisceau réfléchi est en condition dite "anti-Bragg", c'est-à-dire à la position (001) du réseau réciproque dans le cas d'un réseau cubique à faces centrées. Des études montrent en effet qu'une amplitude

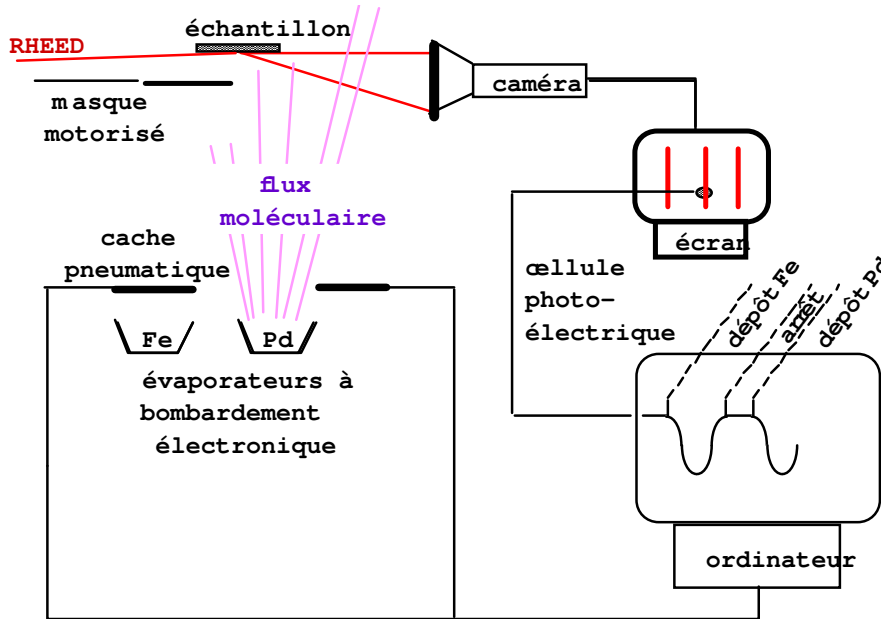


Fig. I.6 : Schéma de principe d'un dépôt alterné en couche par couche contrôlé par les oscillations RHEED (méthode "phase locked epitaxy").

maximale des oscillations RHEED est attendue dans ces conditions de réflexion [CLA 88]. De plus, la fibre optique est positionnée au centre de la tache spéculaire afin de limiter la contribution du fond diffus. Dans ces conditions, le maximum d'intensité réfléchi correspond à la complétion d'une couche déposée [DOB 87]. Il faut cependant noter que la constante de temps du système d'acquisition que nous avons utilisé est relativement grande et un retard systématique est observé : les caches sont fermés un peu après le maximum d'intensité.

2) Les procédures de dépôt

Nous avons choisi d'étudier les couches minces d'alliage $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ épitaxiées sur une surface de palladium car dans cette configuration, les contraintes épitaxiales favorisent la croissance de la phase ordonnée de type L1_0 avec son axe c suivant la direction normale au plan de la couche. La structure des échantillons est schématisée sur la figure I.7. Nous avons utilisé des substrats d'oxyde de magnésium (MgO) sur lesquels nous avons déposé une couche de nucléation de chrome (Cr) puis une couche tampon de palladium (Pd). Ensuite, nous avons déposé la couche d'alliage fer-palladium de composition équiatomique ($\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$) suivant différentes procédures expérimentales. Les couches d'alliage ont finalement été recouvertes d'une couche de palladium d'épaisseur

2 nm pour limiter les processus d'oxydation lors de la remise à l'air. Nous détaillons ci-après les étapes de la fabrication des couches minces.

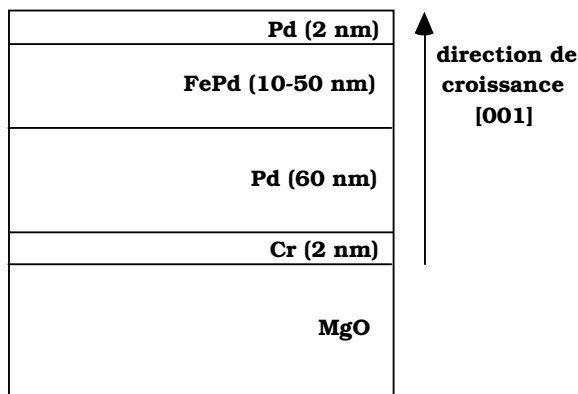


Fig. I.7 : Représentation schématique des échantillons.

Tout au long de ce mémoire, les symboles suivants font références au mode d'élaboration des couches d'alliage :

- **C-TA** : Codéposition à Température Ambiante
- **C-TA/R-420** : Codéposition à Température Ambiante, suivie par un Recuit de 10 minutes à 420°C
- **C-350** : Codéposition à 350°C
- **C/C-TEMPS** : dépôt alterné en Couche par Couche, contrôlé par le TEMPS de dépôt
- **C/C-RHEED** : dépôt alterné en Couche par Couche, contrôlé par les oscillations d'intensité RHEED

a) Préparation des substrats d'Oxyde de Magnésium

La propreté et la planéité des substrats MgO sont des conditions nécessaires pour obtenir l'épitaxie des métaux. Nous avons utilisé des substrats monocristallins polis, fournis par Sumitomo. La direction normale à la surface est l'axe cristallographique [001] avec une tolérance $\pm 0.3^\circ$. La première étape de la préparation des substrats consiste à les dégraisser selon la procédure suivante : bain de trichloroéthane porté à une température légèrement inférieure à son point d'ébullition (environ 70°C) durant 5 minutes, bain d'acétone durant 5 minutes et bain de méthanol durant 5 minutes. Les substrats sont ensuite séchés sous un flux d'azote et collés à l'indium sur les molyblocs. Après l'introduction dans le bâti d'épitaxie, ils sont soumis à un dégazage en 3 étapes qui a pour but de désorber H₂O et CO : recuit durant 1 heure à 150°C, puis 1 heure à 350°C, et enfin 10 minutes à 420°C. A la suite de cette préparation, le diagramme RHEED des substrats présente de nombreuses lignes de Kikuchi du réseau cubique à faces centrées, qui sont caractéristiques de la bonne qualité cristalline de la surface (Fig. I.8).

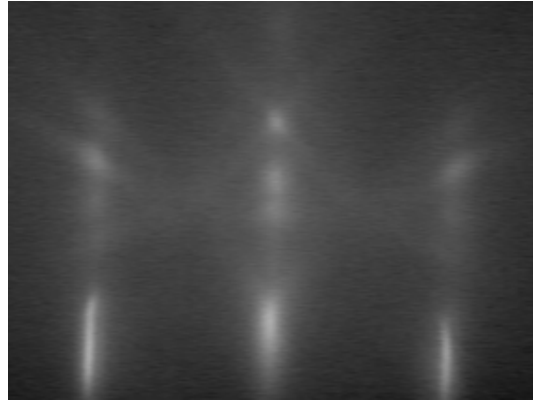
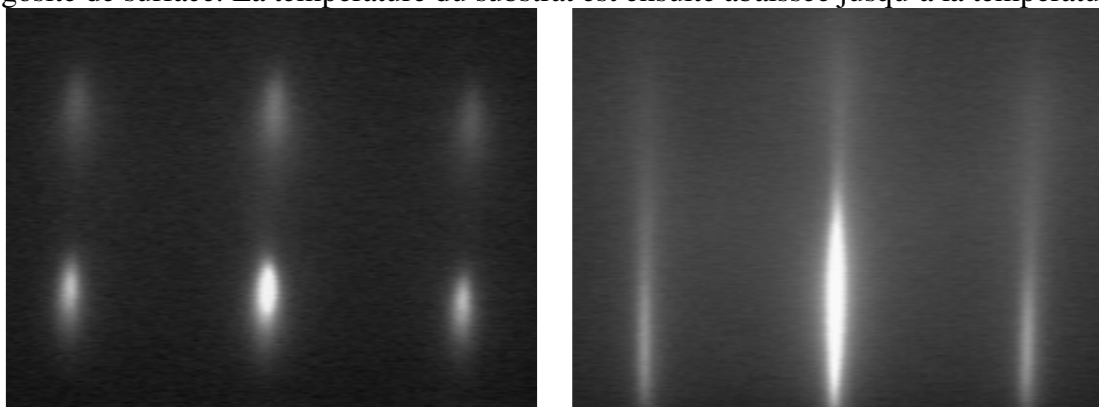


Fig. I.8 : Cliché de diffraction RHEED du substrat MgO suivant l'azimut $[100]$.

b) Préparation des couches tampon de palladium

Pour obtenir une couche tampon de palladium de bonne qualité cristalline, nous déposons tout d'abord sur la surface du substrat MgO une couche de nucléation de chrome, d'épaisseur 2 nm. Le diagramme RHEED révèle que la couche Cr est monocristalline, de structure cubique centrée ; elle s'épitaxie sur le substrat MgO suivant la relation $(001)[110]/(001)[100]$. Ensuite, nous effectuons le dépôt de la couche tampon Pd d'épaisseur 60 nm. Celle-ci est monocristalline et la structure cubique à faces centrées du palladium s'épitaxie sur le chrome suivant la relation $(001)[100]/(001)[110]$. A la suite de ce dépôt, le diagramme RHEED de la couche tampon Pd (Fig. I.9-a) est constitué de taches qui révèlent une forte rugosité de la surface. Nous effectuons alors un recuit de l'échantillon à 420°C pendant 10 minutes. Nous obtenons ainsi un diagramme de diffraction RHEED constitué de tiges (Fig. I.9-b), qui est caractéristique d'une faible rugosité de surface. La température du substrat est ensuite abaissée jusqu'à la température



(a) avant recuit

(b) après recuit

Fig. I.9 : Cliché de diffraction RHEED de la couche tampon Pd suivant l'azimut $[100]$, (a) avant et (b) après la procédure de recuit (10 minutes à 420°C).

à laquelle la couche mince d'alliage sera déposée : en général 350°C ou la température ambiante, voisine de 25°C. Nous attendons au moins 1 heure avant de commencer le dépôt de l'alliage pour assurer la stabilisation de la température.

c) Préparation des couches d'alliage FePd

L'alliage FePd est élaboré suivant deux types de procédures qui sont décrites ci-après : par codéposition, ou en dépôt alterné dit "couche par couche". Dans tous les cas, le diagramme RHEED révèle que les couches minces sont monocristallines, de structure cubique à faces centrées. L'alliage FePd s'épitaie sur la surface de la couche tampon Pd suivant la relation (001)[100]/(001)[100]. La direction normale au plan des couches minces est l'axe [001] des structures cristallines.

i - Codéposition de l'alliage FePd (C-TA et C-350)

La codéposition consiste à évaporer simultanément le fer et le palladium sur la surface de la couche tampon Pd. Les vitesses de dépôt utilisées sont de 1 monocouche d'alliage toutes les 5 secondes (0.2 MC/s), les flux étant régulés par les balances à quartz. La température à laquelle est maintenue le substrat pendant le dépôt est un paramètre très important pour la mise en ordre chimique de l'alliage. Le mode de croissance de l'alliage dépend lui-même fortement de cette température comme l'illustrent les oscillations RHEED (Fig. I.10). Nous comparons dans la suite les résultats obtenus lorsque le codépôt est effectué à température ambiante ou à 350°C *. Les échantillons préparés suivant ces procédures sont respectivement notés **C-TA** et **C-350**.

- A température ambiante, nous avons observé des oscillations RHEED dont la période correspond au dépôt d'une monocouche d'alliage (Fig. I.10-a) : ce type d'oscillations est caractéristique d'un mode de croissance en "couche par couche". A la fin d'un codépôt d'épaisseur 50 nm, le diagramme RHEED est constitué de taches de diffraction, ce qui montre que la surface de l'alliage est rugueuse.

- A 350°C, la période des oscillations RHEED correspond au dépôt de 2 couches atomiques d'alliage (Fig. I.10-b) : nous en déduisons que la surface se lisse tous les 2 plans atomiques. Par analogie avec le mode de croissance en "couche par couche", nous parlerons d'un mode de croissance en "bicouche par bicouche". De plus, le

* Cette température a été choisie car elle permet d'obtenir un échantillon dont le degré d'ordre chimique est élevé, comme on le verra par la suite. Nous proposons dans ce mémoire une étude comparative de la structure et des propriétés magnétiques des échantillons codéposés à température ambiante et à 350°C. Nous mettons ainsi en valeur les différences entre un échantillon de type désordonné et un échantillon de type ordonné. Les études des échantillons codéposés à des températures intermédiaires, menant à des degrés d'ordre partiel, sont en cours.

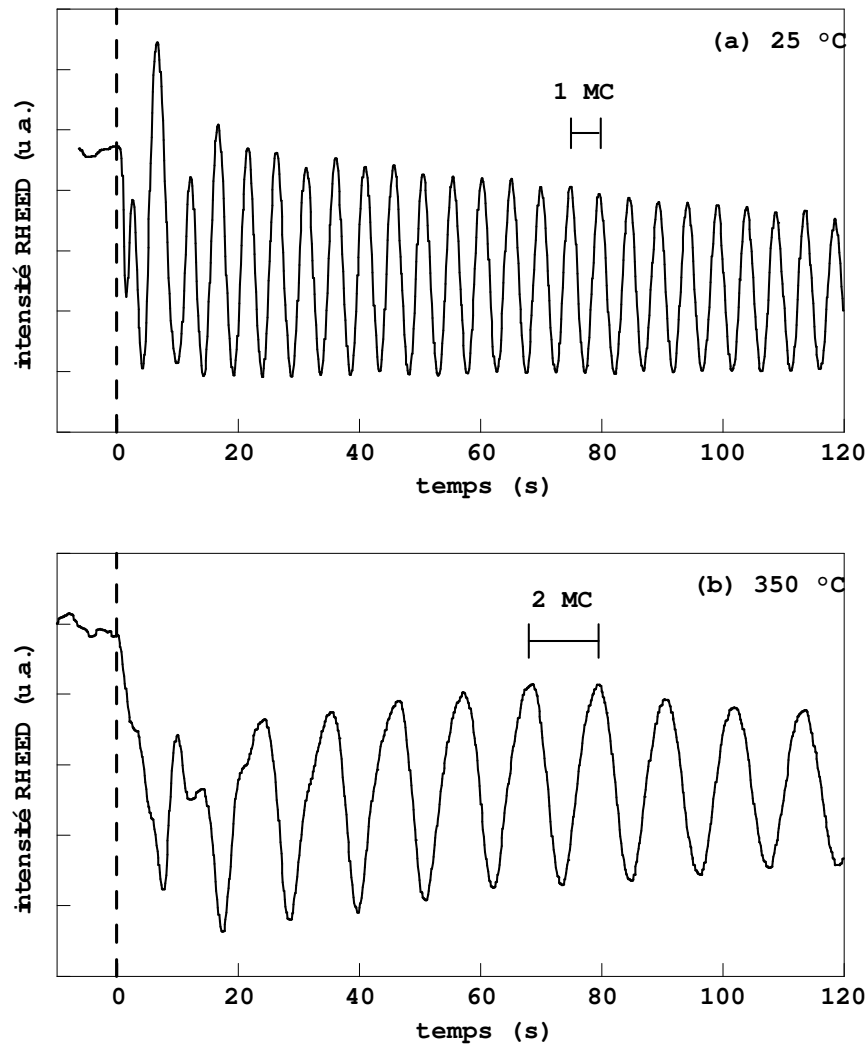


Fig. 1.10 : Variation de l'intensité spéculaire RHEED au cours de la codéposition de l'alliage FePd à (a) 25°C et (b) 350°C. Le début du dépôt correspond au temps $t=0$ s. Le flux incident de matière est égal à 0.2 MC/s.

diagramme RHEED est toujours constitué de tiges à la fin d'un dépôt d'épaisseur 50 nm, ce qui révèle la faible rugosité de la surface.

Comme nous allons le montrer dans l'étude structurale des échantillons, la différence dans le mode de croissance lors des codépôts à température ambiante ou à 350°C reflète la différence d'ordre chimique dans les couches minces : à température ambiante, il se forme la phase désordonnée γ et à 350°C, la phase ordonnée de type $L1_0$. Nous proposons ici une première interprétation qualitative du mécanisme qui conduit à ce résultat.

Lors de la croissance à température ambiante, les atomes se déposent sur des sites au hasard ; à cette température, la diffusion entre les couches est négligeable, aussi la

phase qui se forme est la phase désordonnée. A 350°C, le processus de diffusion, particulièrement en surface, est suffisamment actif pour que les atomes s'organisent dans la configuration de plus faible énergie qui est la phase ordonnée $L1_0$. Cette phase, qui peut être décrite comme la succession de plans atomiques Fe et Pd, a une périodicité de 2 couches atomiques. Il en résulte un mode de croissance en " bicouche par bicouche ". La force motrice pour ce mode de croissance est la mise en ordre chimique de l'alliage. De plus, la différence d'énergie de surface entre le fer et le palladium doit contribuer : celle-ci tend à favoriser la présence des atomes Pd en surface [MEZ 82].

Le mode de croissance en " bicouche par bicouche " est communément observé dans la croissance des semi-conducteurs, comme par exemple GaAs [NEA 83], qui sont des composés dont la période chimique est de 2 plans atomiques dans la direction normale au plan de la couche mince. Ces oscillations de période double ont également déjà été observées dans des systèmes d'alliages métalliques, et plus précisément dans le système FeAl [WOW 89]. Dans cette étude, les auteurs présentent un changement de mode de croissance en fonction de la composition chimique de la couche d'alliage déposée : la période des oscillations RHEED est double dans le domaine de composition de la phase ordonnée de type $L1_0$ et simple en dehors de ce domaine. Ces observations de mode de croissance en " couche par couche " ou " bicouche par bicouche " sont également à rapprocher des études concernant l'état de surfaces vicinales [110] de l'alliage $Cu_{83}Pd_{17}$ de structure ordonnée ou désordonnée [BAR 94]. La phase ordonnée est dans ce cas une phase de type $L1_2$ qui présente une périodicité de 2 plans atomiques dans la direction [110] avec une alternance de plans purs Cu et mixtes CuPd. Les auteurs ont pu mettre en évidence que la surface de l'alliage ordonné présente des marches de hauteur biatomique, alors que la surface de l'alliage désordonné présente des marches de hauteur monoatomique.

Dans le cas du codépôt à 350°C, il faut noter que les oscillations de période double s'installent après un régime mixte pendant lequel se superposent des oscillations de période simple et des oscillations de période double (Fig. I.10-b). Le régime de croissance à des températures intermédiaires est également complexe : à 220°C par exemple, nous avons observé un régime stable d'oscillations de période simple mais avec alternance d'une oscillation de grande amplitude et d'une oscillation de petite amplitude : les oscillations RHEED observées après 4 minutes de dépôt, soit 25 couches atomiques ou une épaisseur d'environ 100 Å d'alliage, sont représentées sur la figure I.11. L'analyse du mécanisme de croissance dans ces régimes mixtes est complexe et nécessite une étude plus approfondie, par des expériences de diffraction de surface sous rayonnement synchrotron par exemple.

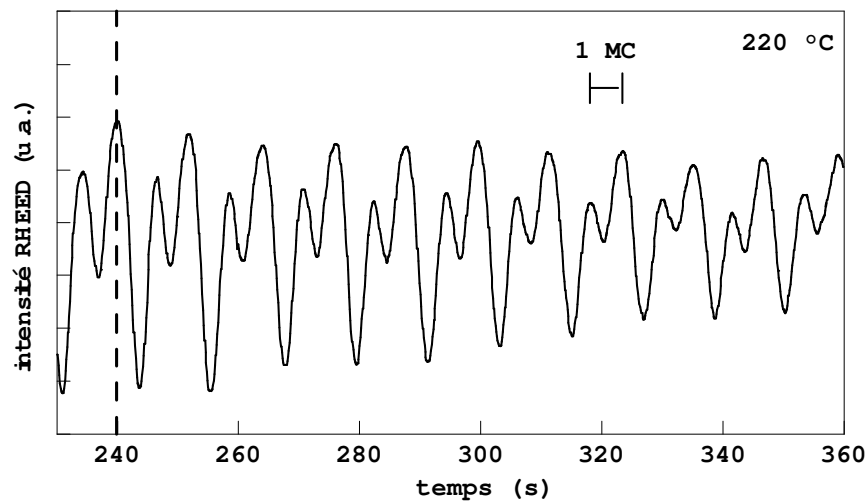


Fig. I.11 : Variation de l'intensité spéculaire RHEED au cours de la codéposition de l'alliage FePd à 220°C. Le début du dépôt correspond au temps $t=0$ s, non représenté sur la figure. Le flux incident de matière est égal à 0.2 MC/s.

ii - Procédure de recuit (C-TA/R_420)

Dans le but d'étudier la mise en ordre chimique induite par un mécanisme de diffusion en volume, nous avons effectué un recuit à 420°C pendant 10 minutes, sur un échantillon codéposé à température ambiante. Cet échantillon est noté **C-TA/R-420**.

Le recuit a été effectué sous ultra-vide, dans la chambre de dépôt du bâti, et le choix de la température et de la durée du recuit a été guidé par l'évolution du diagramme RHEED pendant le recuit. Nous rappelons qu'à la suite de la codéposition de l'alliage à température ambiante, le diagramme RHEED de la surface de l'alliage était formé de taches de diffraction (Fig. I.12-a). Durant les 10 minutes de recuit à 420°C, les taches de

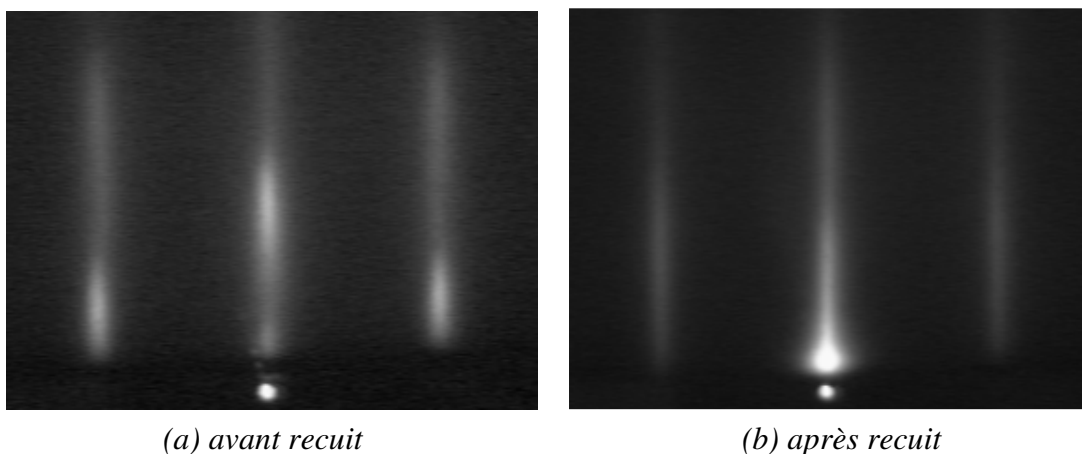


Fig. I.12 : Cliché de diffraction RHEED de l'alliage FePd (épaisseur 50 nm) codéposé à température ambiante (a) avant et (b) après la procédure de recuit (10 minutes à 420°C).

diffraction se sont progressivement allongées jusqu'à se transformer en tiges (Fig. I.12-b). Ceci révèle qu'une diffusion en surface a eu lieu.

D'après le diagramme TTT de l'alliage FePd massif (Fig. I.3), ce traitement de recuit devrait être insuffisant pour provoquer la mise en ordre en volume de l'alliage. Cependant, les conditions de diffusion peuvent être très différentes dans une couche mince sous contraintes épitaxiales [JOH 90, MCI 97]. De plus, pour limiter la diffusion des éléments de l'alliage dans la couche tampon de palladium, il n'est pas souhaitable d'effectuer un recuit de longue durée à haute température. L'étude structurale, réalisée ex-situ et décrite au Chapitre II de ce mémoire, permettra de déterminer si la procédure de recuit de 10 minutes à 420°C est suffisante pour induire la mise en ordre chimique souhaitée.

iii - Dépôt alterné de couches atomiques de fer et palladium (C/C-TEMPS et C/C-RHEED)

Comme nous l'avons vu, l'Épitaxie par Jets Moléculaires est une technique de fabrication de couches minces par laquelle il est possible de contrôler le dépôt d'une couche atomique. Nous avons donc envisagé de fabriquer artificiellement la structure ordonnée de type L1₀ par dépôt alterné de couches atomiques Fe et Pd. Nous avons utilisé deux approches pour contrôler le dépôt de ces couches atomiques.

Dans le premier cas, les quantités de Fe et Pd, constituant approximativement 1 couche atomique, sont déposées en utilisant un temps d'évaporation constant, fixé après calibration des vitesses de dépôt des sources : les flux incidents ont été fixés à 0.2 MC/s pour les deux sources et les deux évaporateurs sont ouverts alternativement pendant une durée de 5 s. En suivant les oscillations RHEED au cours de ce dépôt (Fig. I.13), nous observons un décalage du maximum d'intensité par rapport aux ouvertures des évaporateurs. Les ouvertures des évaporateurs sont de nouveau en phase avec les oscillations RHEED après 10 périodes d'ouverture des caches de fer et palladium ; les oscillations RHEED témoignent alors du dépôt de 11 bicouches d'atomes. Ceci signifie qu'en moyenne, 1.1 monocouche d'atomes est déposée à chaque ouverture. Cet échantillon est noté **C/C-TEMPS**.

Dans le second cas, les oscillations RHEED sont utilisées pour contrôler le déplacement des caches devant les évaporateurs, suivant la méthode " phase-locked epitaxy ". Un premier évaporateur est ouvert, puis fermé quand un maximum d'intensité RHEED est atteint, ce qui doit correspondre à la complétion d'une couche atomique. Un temps d'attente d'une durée de 5 s est observé, puis le second évaporateur est ouvert et fermé au maximum d'intensité RHEED suivant. Après un second temps d'attente de 5 s,

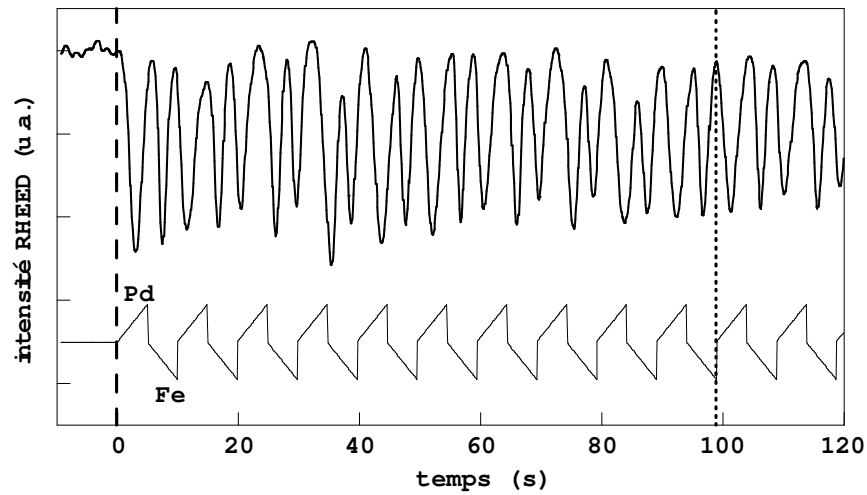


Fig. I.13 : La ligne du haut représente la variation de l'intensité spéculaire RHEED au cours d'un dépôt alterné C/C-TEMPS de l'alliage FePd ; la ligne du bas représente la séquence d'ouverture des évaporateurs qui sont alternativement ouverts pour une durée de 5 s. Le début du dépôt correspond au temps $t=0$ s. Les ouvertures des évaporateurs sont de nouveau en phase avec les oscillations RHEED après 10 périodes d'ouverture des caches de fer et palladium.

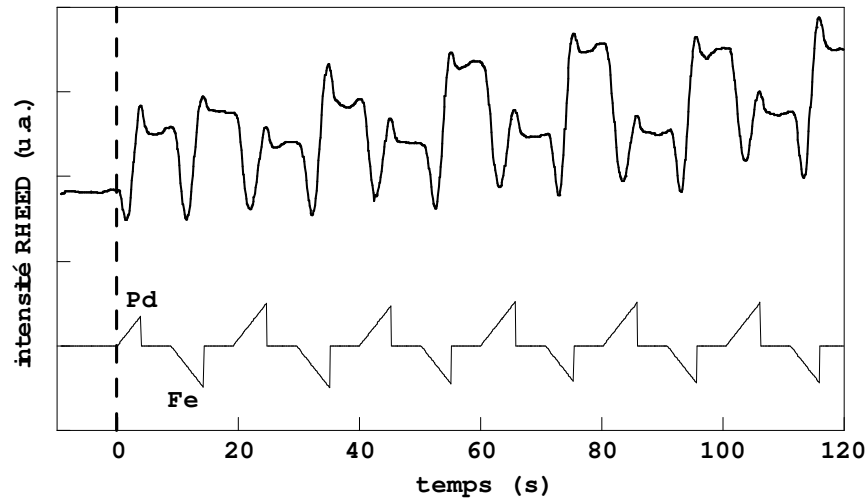


Fig. I.14 : La ligne du haut représente la variation de l'intensité spéculaire RHEED au cours d'un dépôt alterné C/C-RHEED de l'alliage FePd ; la ligne du bas représente la séquence d'ouverture des évaporateurs : ouverture de la source Pd et fermeture sur le maximum d'intensité RHEED, repos de 5 s, ouverture de la source Fe et fermeture sur le maximum d'intensité RHEED, repos de 5 s.

la séquence d'ouverture des caches est reprise (Fig. I.14). Dans ce cas, bien que les flux atomiques Fe et Pd aient été tous les deux fixés à 0.2 MC/s, les temps moyens des dépôts sont 4.5 ± 0.5 s pour Fe et 5.7 ± 0.6 s pour Pd. La composition moyenne de cet échantillon n'est donc pas la composition équiatomique : nous avons élaboré un alliage Fe₄₅Pd₅₅. Il faut noter que l'amplitude des oscillations RHEED diminue au fur et à mesure du dépôt car la rugosité de la surface augmente. Pour cette raison, il n'est pas possible de contrôler un dépôt en "couche par couche" d'après les oscillations RHEED au-delà de 25 monocouches déposées, aussi l'épaisseur de l'échantillon est-elle limitée à 10 nm dans ce mode de dépôt. Cet échantillon est noté **C/C-RHEED**.

3) Elaboration des couches minces : résumé

Nous avons élaboré des couches minces monocristallines d'alliage FePd en Epitaxie par Jets Moléculaires. La direction de croissance correspond à l'axe [001] des structures cristallines qui est commun aux substrats MgO, aux couches tampon Pd et aux couches d'alliage FePd (Fig. I.15). Le tableau I.1 résume les différentes procédures expérimentales que nous avons utilisées ainsi que le mode de croissance donné par les oscillations RHEED.

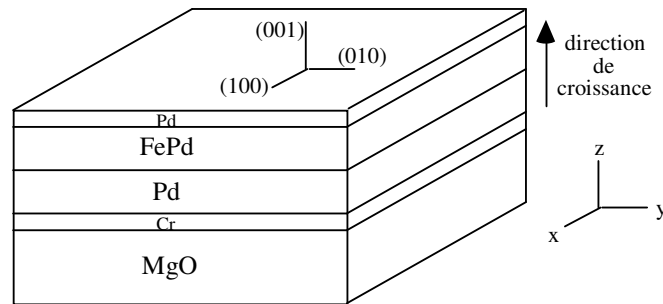


Fig. I.15 : Schéma de la structure des échantillons : la couche d'alliage FePd est déposée sur une couche tampon Pd, elle-même obtenue par dépôt sur un substrat MgO. En raison de l'épitaxie, les directions cristallographiques (100), (010), et (001) sont communes au MgO, au Pd et au FePd.

type d'échantillon	procédure de dépôt	mode de croissance
C-TA	codéposition à température ambiante	“ couche par couche “
C-TA/R-420	codéposition à température ambiante suivie par un recuit durant 10 minutes à 420°C	
C-350	codéposition à 350°C	“ bicouche par bicouche “
C/C-TEMPS	dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt	
C/C-RHEED	dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED	

Table I.1 : Les différentes procédures d'élaboration des couches d'alliage FePd.

CHAPITRE II

Caractérisation structurale

Plusieurs techniques de caractérisation structurale peuvent être adaptées à l'étude des couches minces. Elles sont souvent complémentaires car chacune d'elles fournit des informations spécifiques. La microscopie électronique nous a permis de caractériser la structure des couches minces et d'étudier les défauts cristallins. Nous avons effectué des expériences de diffraction des rayons X pour déterminer les paramètres de maille des structures et évaluer le degré d'ordre chimique à longue distance. Enfin, une étude par spectroscopie EXAFS a été menée pour caractériser l'ordre chimique local. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous proposons une discussion sur la complémentarité des paramètres d'ordre à longue distance et des paramètres caractérisant l'ordre à courte distance directionnel.

A - Microscopie Electronique en Transmission

La Microscopie Electronique en Transmission permet de visualiser les couches minces en vue de dessus ou en vue de côté. Les clichés de diffraction caractérisent la structure cristalline du matériau. La Microscopie Electronique en Transmission est de plus une technique très performante pour l'analyse des défauts structuraux présents dans les couches minces. Nous avons également entrepris une première analyse des structures ordonnée et désordonnée par Microscopie Electronique à Haute Résolution. Après une brève description du microscope électronique et de la méthode de préparation des lames minces, nous présentons les résultats obtenus sur les couches minces d'alliage FePd élaborées par codéposition et dépôt alterné de couches atomiques de fer et palladium.

1) Description du microscope

Les observations ont été réalisées sur un microscope 4000EX de la marque JEOL, dont le coefficient de sphéricité est égal à $C_s=1.05$ mm. La tension d'accélération des électrons est 400 kV. La résolution ponctuelle du microscope est 0.165 nm.

2) Préparation des lames minces

Les couches minces ont été étudiées par Microscopie Electronique en Transmission suivant deux directions d'observation : en vue plane [001] et en vue transverse [100].

a) Préparation pour l'observation en vue plane [001]

Un polissage mécanique réduit tout d'abord l'épaisseur de l'échantillon à 120 μm environ. Ensuite, un disque de 3 μm de diamètre est découpé par un carottage aux ultrasons. Une cuvette est alors creusée au centre du disque par un dispositif de polissage mécanique (dimpler) ; au centre de la cuvette, l'épaisseur de la couche mince est réduite à 20 μm environ. Enfin la lame est perforée par amincissement ionique, sous un faisceau d'ions argon d'énergie 5 kV, dans un appareil de la marque Gatan.

b) Préparation pour l'observation en vue transverse [100]

Deux couches minces sont tout d'abord collées face à face. Un polissage mécanique de la tranche des échantillons, orientée suivant la direction cristallographique [100], réduit alors l'épaisseur à 50 μm environ. Ensuite, l'échantillon est collé sur une rondelle en cuivre qui sert de support. L'amincissement ionique est finalement utilisé jusqu'à la perforation de la lame mince en son centre.

3) Observations

a) Codépôt à température ambiante (C-TA)

Les figures de diffraction observées en vue plane et en vue transverse [100] sur l'échantillon C-TA (Fig. II.1) confirment la structure monocristalline de la couche déposée, ainsi que l'épitaxie de l'alliage FePd sur la couche tampon de palladium. En vue

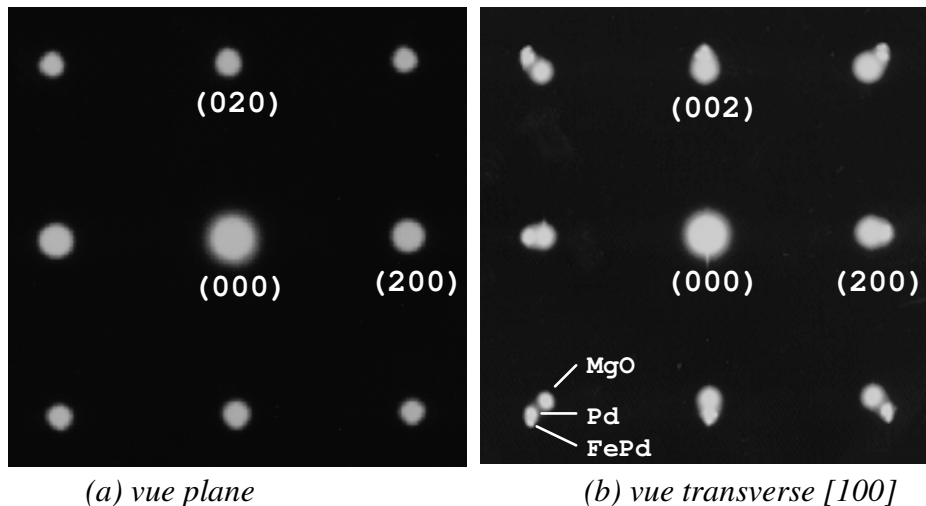


Fig. II.1 : Clichés de diffraction électronique de l'échantillon C-TA.

plane, les taches de diffraction aux positions de type $\{200\}$, caractéristiques d'un réseau cubique à faces centrées pour l'alliage et la couche tampon, se superposent. En vue transverse $[100]$, nous pouvons distinguer, aux positions du type $\{202\}$, les taches de diffraction provenant du substrat MgO, de la couche tampon Pd et de la couche d'alliage FePd ; l'alignement de ces deux dernières suivant la direction $[001]$ montre l'épitaxie de l'alliage sur la couche tampon. De plus, nous n'observons pas de taches supplémentaires, aux positions de type $\{110\}$ ou $\{001\}$, qui résulteraient d'une mise en ordre chimique de l'alliage. Cette observation montre que l'échantillon C-TA est formé de la phase désordonnée γ .

Nous présentons une image de microscopie électronique à haute résolution, en vue transverse $[100]$ (Fig. II.2). Mises à part les différences de contraste provenant des inhomogénéités d'épaisseur de la lame mince, les colonnes atomiques sont imagées avec un même contraste, ce qui confirme le désordre chimique de l'alliage. L'image révèle la très grande qualité cristalline de la couche mince : peu de défauts structuraux tels que des dislocations sont présents. Plus précisément, l'analyse du réseau réciproque suivant d'autres azimuts n'a pas permis de révéler la présence de macles, comme ce sera le cas pour l'échantillon codéposé à 350°C présenté plus loin.

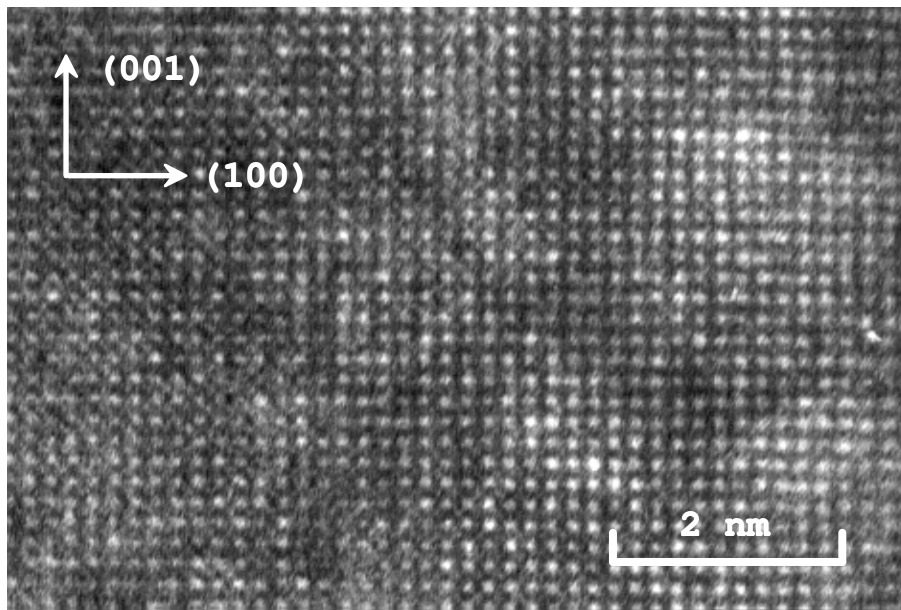


Fig. II.2 : Image haute résolution en vue transverse $[100]$ de l'échantillon C-TA.

b) Codépôt à température ambiante recuit à 420°C (C-TA/R-420)

Pour l'échantillon C-TA/R-420, les figures de diffraction observées en vue plane et en vue transverse $[100]$ (Fig. II.3) ne présentent pas non plus de taches de surstructure aux positions de type $\{110\}$ ou $\{001\}$. Le traitement de recuit n'a pas induit de mise en ordre chimique à longue distance.

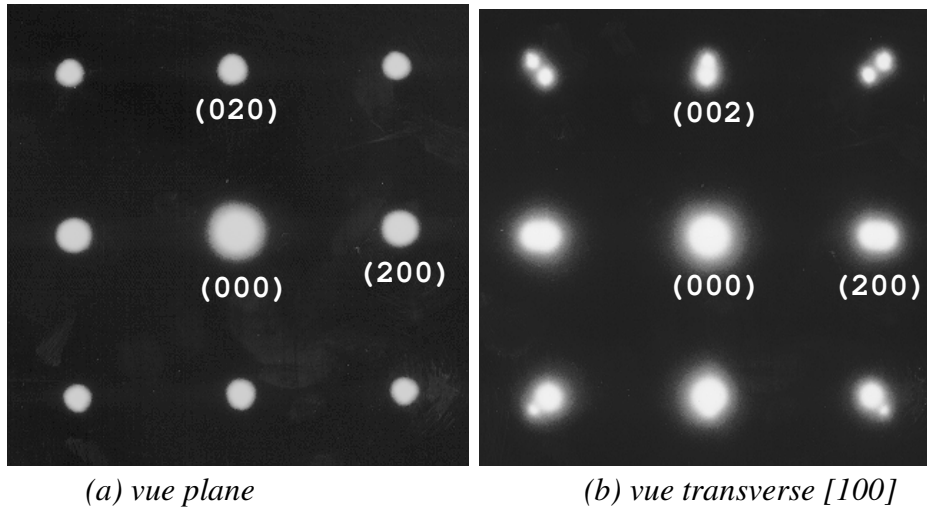


Fig. II.3 : Clichés de diffraction électronique de l'échantillon C-TA/R-420.

c) Codépôt à 350°C (C-350)

i - Clichés de diffraction

Les clichés de diffraction obtenus sur l'échantillon C-350 en vue plane et en vue transverse [100] sont présentés sur la figure II.4. Nous retrouvons les taches de diffraction de type {200} correspondant à la structure cubique à faces centrées. En vue plane, des réflexions intenses apparaissent aux positions de type {110} et des taches de plus faible intensité sont présentes sur la vue transverse aux positions de type {001}. Ces

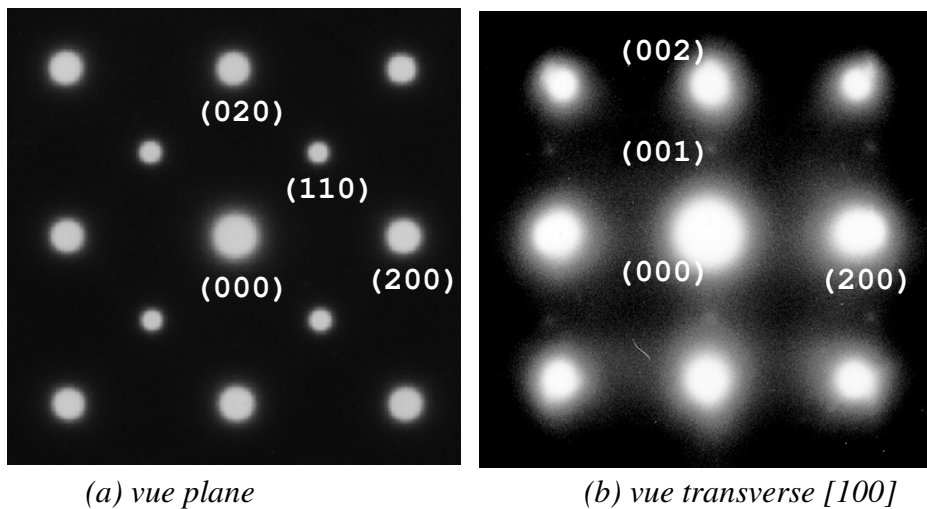


Fig. II.4 : Clichés de diffraction électronique de l'échantillon C-350.

réflexions correspondent à la mise en ordre chimique de type $L1_0$, avec l'axe c aligné sur la direction normale au plan de la couche mince. L'intensité des réflexions en vue plane montre que le degré d'ordre chimique est très élevé ; la faiblesse de l'intensité diffractée en vue transverse résulte du fait qu'une très faible quantité de matière contribue à la figure de diffraction dans ce type d'observation. Un autre élément à noter sur la figure de diffraction en vue plane est l'absence d'intensité réfléchie aux positions de type $\{100\}$ qui correspondrait à la structure ordonnée de type $L1_2$, ou aux deux autres variants possibles de l'ordre $L1_0$ (c'est-à-dire avec l'axe c de la structure ordonnée dans le plan de la couche mince, suivant les directions $[100]$ ou $[010]$). Cette étude montre donc la présence de l'ordre $L1_0$ et suivant un seul variant : avec l'axe c parallèle à la direction normale au plan de la couche mince. Rappelons que la présence du seul variant avec l'axe c perpendiculaire est une condition très importante pour atteindre notre objectif, qui est d'obtenir une couche mince à anisotropie magnétique perpendiculaire.

ii - Clichés haute résolution

Nous présentons les images obtenues en microscopie électronique à haute résolution en vue transverse $[100]$ (Fig. II.5) et en vue plane $[001]$ (Fig. II.6). Sur certaines parties de ces deux images, nous remarquons que les colonnes atomiques n'ont pas toutes le même contraste. Plus précisément, sur la vue transverse $[100]$, les colonnes atomiques constituant deux plans (001) successifs sont alternativement plus claires ou plus foncées. En vue plane, le long d'une direction $[100]$ par exemple, nous trouvons alternativement une colonne au contraste plus clair et une colonne au contraste plus foncé.

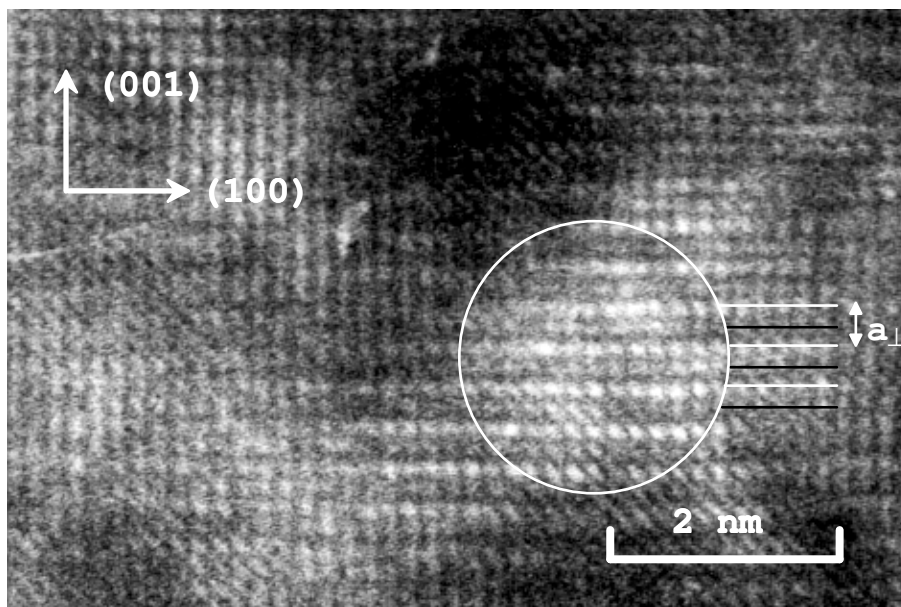


Fig. II.5 : Image haute résolution en vue transverse $[100]$ de l'échantillon C-350.

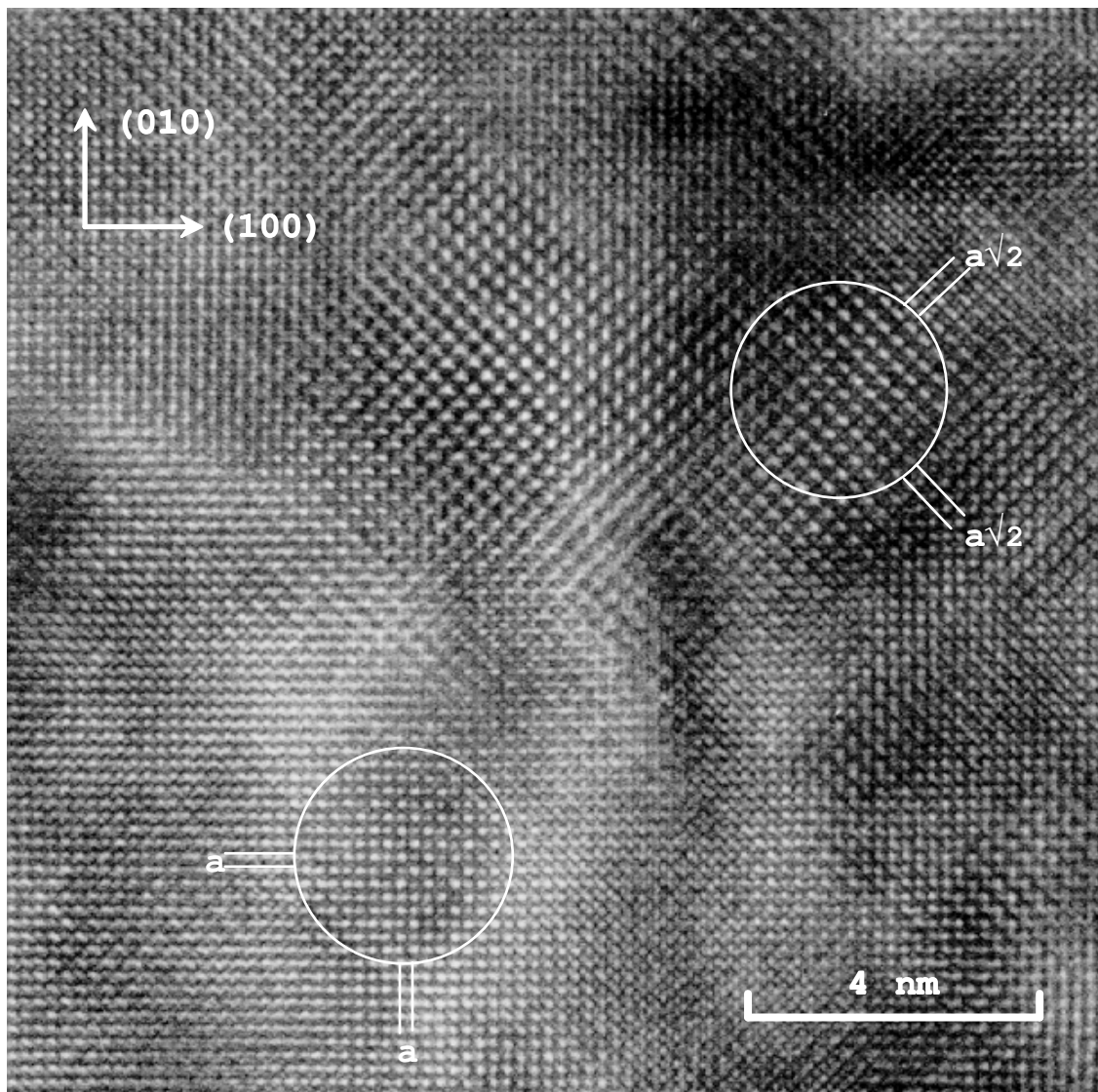


Fig. II.6 : Image haute résolution en vue plane de l'échantillon C-350.
(Le paramètre a est égal à $a_{//}/2$)

Un raisonnement rapide permet de comprendre l'origine de ces différences de contraste. En microscopie électronique à haute résolution, le contraste d'une colonne atomique dépend notamment du numéro atomique moyen des atomes qui la composent. Sur les images présentées, les différences de contraste résultent ainsi d'une différence de composition moyenne entre les colonnes atomiques : celles-ci sont successivement enrichies en fer ou en palladium. Le contraste observé est une visualisation "directe" de la mise en ordre chimique de type $L1_0$.

La formation du contraste des images de microscopie électronique à haute résolution est cependant beaucoup plus complexe et il dépend de nombreux paramètres comme la distance de focalisation et l'épaisseur de la lame mince. Pour nous assurer que le contraste observé expérimentalement résulte de la mise en ordre chimique de type $L1_0$, nous avons utilisé un programme de simulation des images. Nous avons calculé l'image attendue de l'observation de l'alliage FePd parfaitement ordonné dans la structure $L1_0$, en vue transverse $[100]$ (Fig. II.7) et en vue plane $[001]$ (Fig. II.8).

Le programme de simulation, dénommé EMS (Electron Microscopy Simulation), a été développé par P.A. Stadelmann (CERN, Suisse) [STA 87]. La méthode de calcul est basée sur la théorie “ multicouches ” (multislices). Nous avons introduit un coefficient d’absorption de 10%, ainsi que les paramètres caractéristiques du microscope JEOL-4000EX sur lequel ont été faites les observations (tension d’accélération 400 kV, coefficient de sphéricité $C_s=1.05$ mm). Le résultat du calcul est une carte d’intensité en fonction de la distance de focalisation et de l’épaisseur de la lame mince. Nous montrons ainsi que le contraste observé expérimentalement, comme l’alternance de plans atomiques clairs et sombres en vue transverse, peut être obtenu dans certaines conditions bien précises d’observation de la structure $L1_0$: pour une longueur de focalisation de 60 nm et une épaisseur de lame mince de 10 nm par exemple. Ceci explique que le contraste résultant de la mise en ordre chimique ne soit pas présent sur toute l’étendue de l’image expérimentale. Plus précisément, cette analyse montre qu’il ne faut pas conclure hâtivement que les zones où le contraste n’est pas apparent sont des zones chimiquement désordonnées. L’analyse quantitative d’une image haute résolution, qui pourrait par

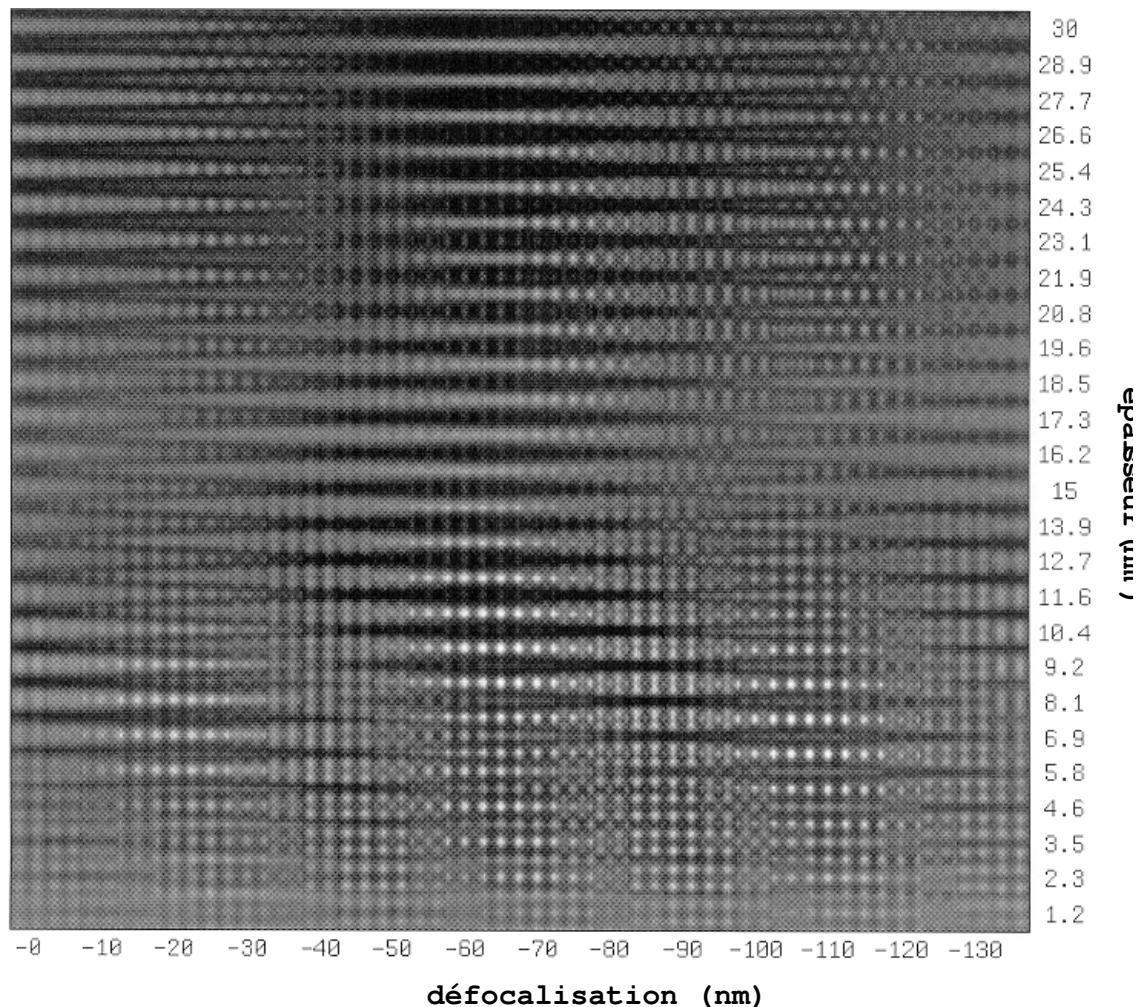


Fig. II.7 : Image haute résolution simulée par le programme EMS, de la structure ordonnée $L1_0$, en vue transverse $[100]$.

exemple donner une mesure du degré d'ordre chimique, n'est pas triviale. Une telle étude nécessite notamment l'utilisation de lames minces de grande qualité, d'une épaisseur plus homogène que celle dont nous disposons pour l'instant. Pour mener cette étude, il faut envisager de nouvelles méthodes de préparation des lames minces, comme le polissage par un système tripode par exemple.

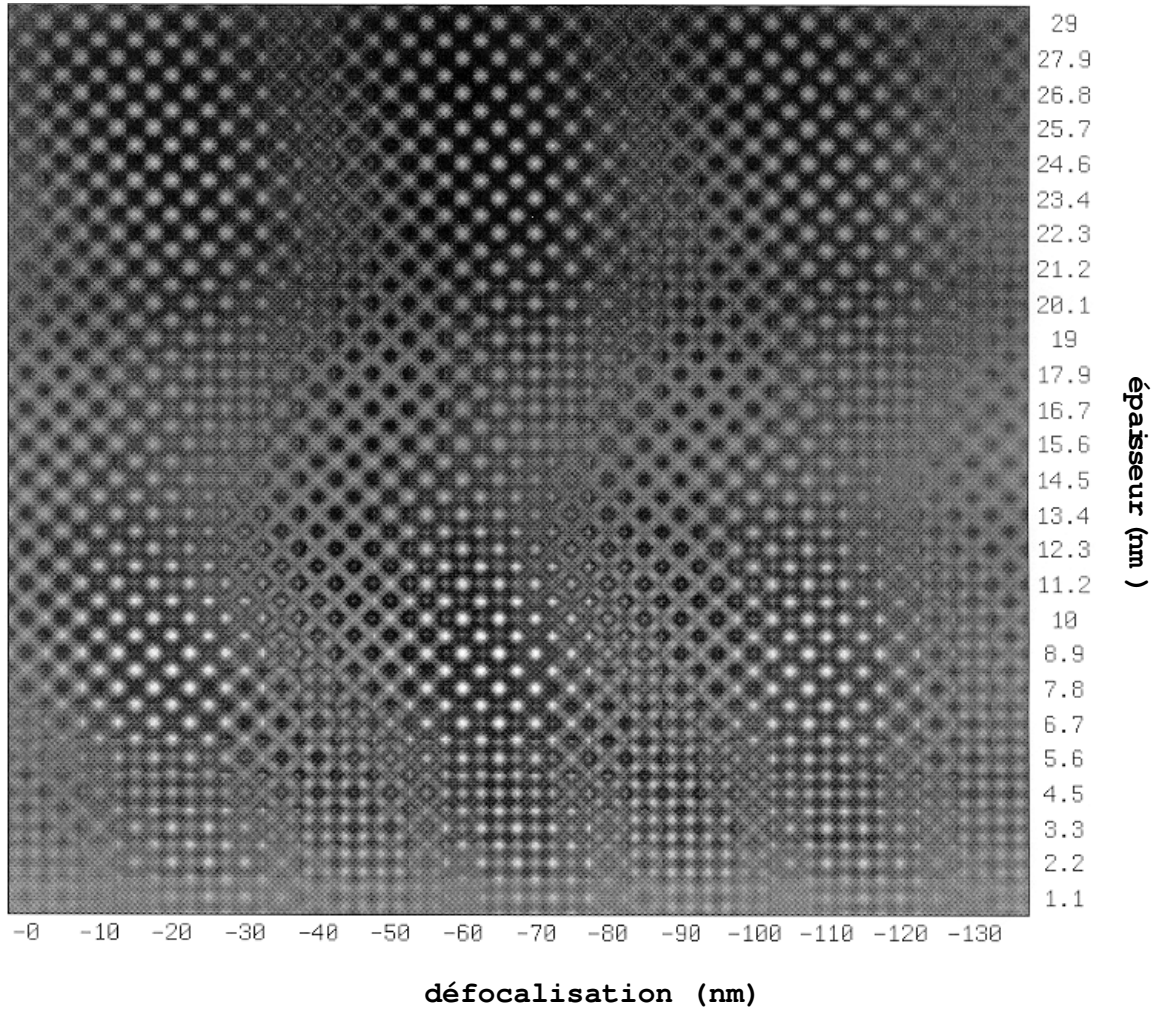


Fig. II.8 : Image haute résolution simulée par le programme EMS, de la structure ordonnée $L1_0$, en vue plane [001].

iii - Etude des défauts structuraux

Des études reportées dans la littérature montrent que les défauts sont susceptibles d'influencer les propriétés magnétiques, en freinant le déplacement des parois entre domaines magnétiques ou en facilitant la nucléation de nouveaux domaines magnétiques par exemple. Les études de microscopie Lorentz par Zhang et Soffa [ZHA 92] ont permis de visualiser l'interaction des parois de domaines magnétiques avec la structure micromaclée d'échantillons FePd massif. Les résultats de Klemmer et al. [KLE 95] sur l'alliage FePd massif montrent par ailleurs que l'élimination, par un procédé thermomécanique, de la structure micromaclée et des parois d'antiphase permet d'augmenter considérablement le champ coercitif du matériau. En raison de l'influence qu'ils peuvent avoir sur les propriétés magnétiques, nous avons entrepris l'étude des défauts dans les couches minces d'alliage FePd.

- Les macles

L'étude par microscopie électronique conventionnelle en vue plane a permis de révéler la présence de macles, dont la structure est schématisée sur la figure II.9. Les macles sont des zones dans lesquelles le réseau cristallin est désorienté par rapport au réseau cristallin de base, dans le reste de la couche mince. Plus précisément, la déviation correspond à une symétrie du réseau de base sur les plans de type $\{111\}$. Ces zones donnent lieu à des taches de diffraction dans l'espace réciproque : en désorientant de 19° la lame mince en vue plane autour de l'axe $[110]$, les taches de type $1/3\{151\}$ interceptent la sphère d'Ewald et apparaissent sur le cliché de diffraction de la figure II.10. L'image en champ sombre obtenue en sélectionnant cette intensité diffractée par les macles, est présentée sur la figure II.11. Le contraste clair correspond aux zones macleées. Ce type de défauts a déjà été observé dans des couches minces d'alliage AuNi par exemple [DYN 96]. Ils résultent du processus de relaxation des contraintes, par une série de dislocations partielles $1/6(\bar{1}12)$ qui glissent sur des plans atomiques $\{111\}$ successifs. Nous rappelons que l'écart paramétrique entre la couche tampon Pd et la phase ordonnée FePd est égal à 1%.

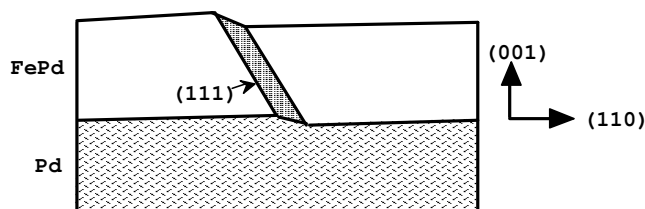


Fig. II.9 : Schéma des macles.

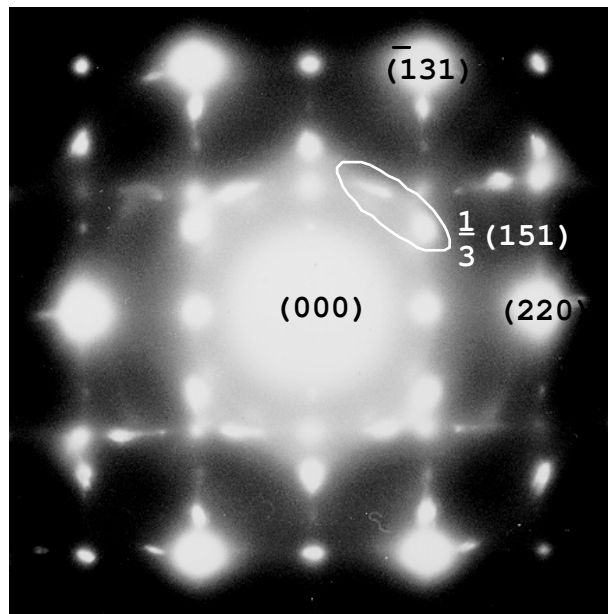


Fig. II.10 : Cliché de diffraction électronique de l'échantillon C-350 en vue plane tiltée de 19° autour de l'axe $[110]$.

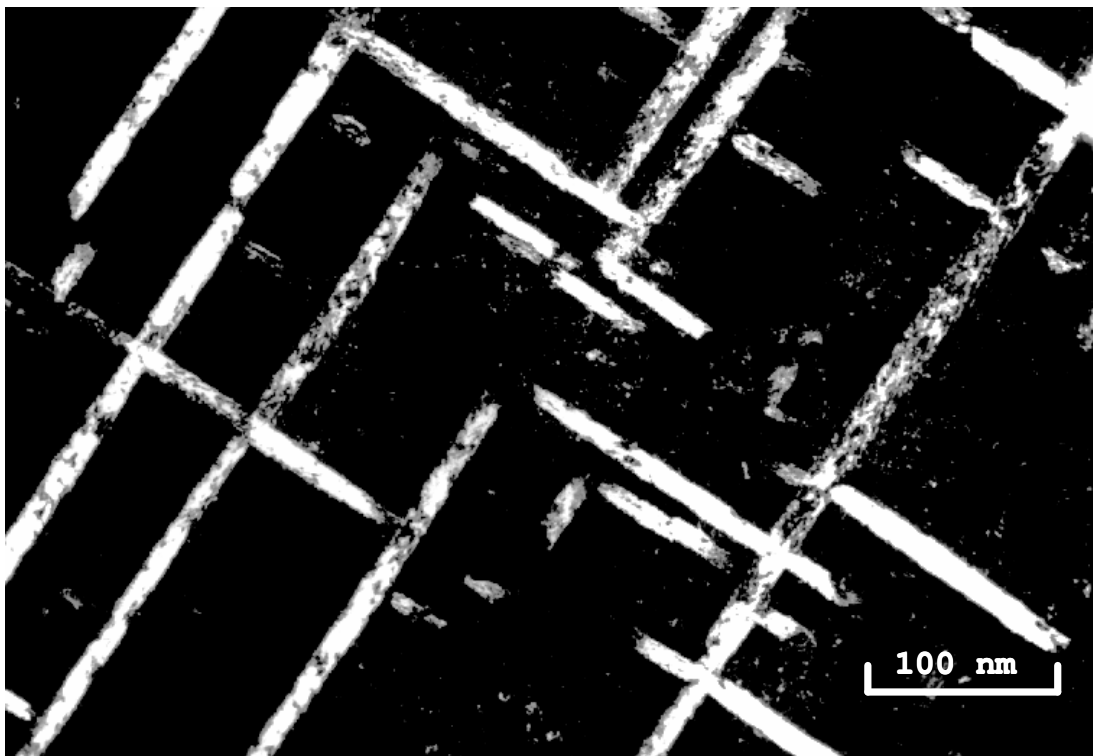


Fig. II.11 : Image en champ sombre des macles dans l'échantillon C-350 : l'intensité sélectionnée est celle des taches de diffraction de type $1/3\{151\}$.

- Les parois d'antiphase

La microscopie conventionnelle sur l'échantillon C-350 en vue plane a également permis de visualiser des parois d'antiphase de la structure ordonnée, schématisées sur la figure II.12. Une image en champ sombre obtenue en sélectionnant l'intensité des taches de surstructure (110) (Fig. II.4-a) est présentée sur la figure II.13. Les lignes noires correspondent à des zones localement désordonnées qui sont des parois d'antiphases. Cette image révèle que ces parois sont très fines : leur épaisseur ne dépasse pas quelques distances interatomiques. De plus elles sont verticales. La taille des domaines antiphases est très variable : de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres.

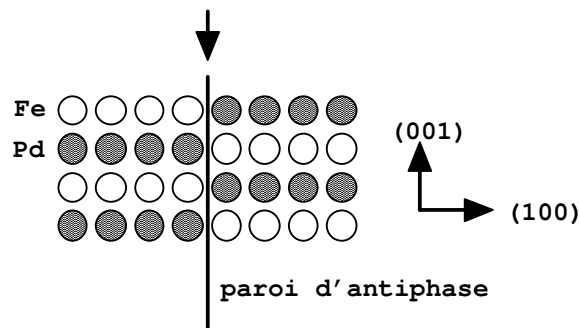


Fig. II.12 : Schéma d'une paroi d'antiphase dans la structure ordonnée Ll_0 .

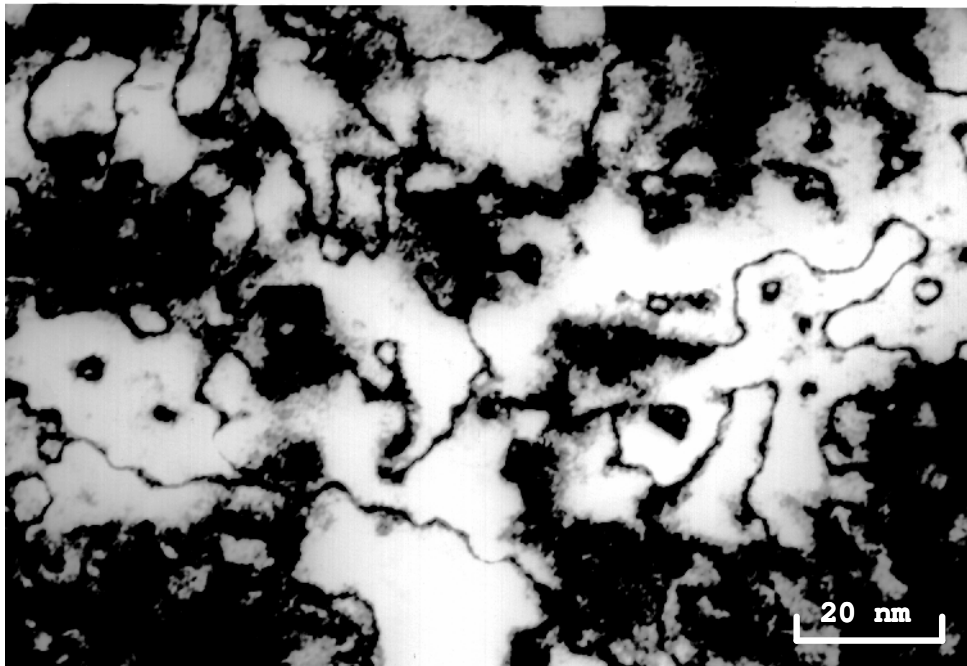


Fig. II.13 : Image en champ sombre des parois d'antiphase dans l'échantillon C-350 : l'intensité sélectionnée est celle des taches de diffraction (110).

Comme nous l'avons vu, les parties de contraste clair, sur cette image en champ sombre, correspondent à des zones ordonnées. Nous remarquons un contraste plus sombre dans certaines parties de l'image et l'origine de ce contraste reste à éclaircir. Ces régions peuvent correspondre à des zones où le paramètre d'ordre est plus faible, ceci pouvant résulter d'un écart à la concentration équiatomique moyenne. Il nous paraît important de déterminer l'origine de ce contraste, pour préciser le degré d'homogénéité de l'alliage. Celui-ci est en effet susceptible d'influencer les propriétés magnétiques.

d) Dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt (C/C-TEMPS)

La figure de diffraction en vue plane de l'échantillon C/C-TEMPS (Fig. II.14), présente une faible intensité diffractée aux positions de type $\{110\}$ et celle-ci est très étalée dans l'espace réciproque. Nous en déduisons qu'un ordre chimique local à courte distance existe dans cet échantillon.

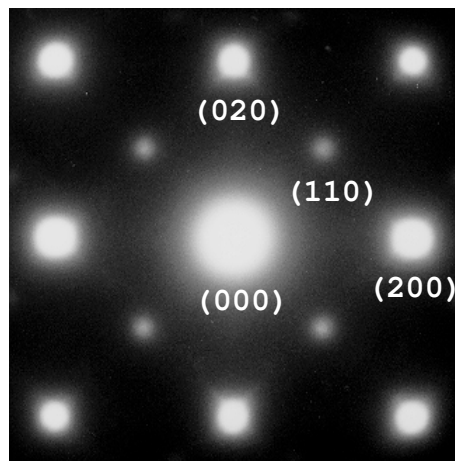


Fig. II.14 : Cliché de diffraction électronique de l'échantillon C/C-TEMPS en vue plane.

e) Dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED (C/C-RHEED)

Le cliché de diffraction en vue plane de l'échantillon C/C-RHEED est présenté sur la figure II.15. Des taches de surstructure aux positions $\{110\}$ sont apparentes. Elles sont moins étalées que pour l'échantillon C/C-TEMPS et leur intensité relative par rapport aux taches fondamentales $\{200\}$ est plus faible que pour l'échantillon C-350. Ces observations montrent qu'il existe dans cet échantillon un ordre à longue distance partiel.

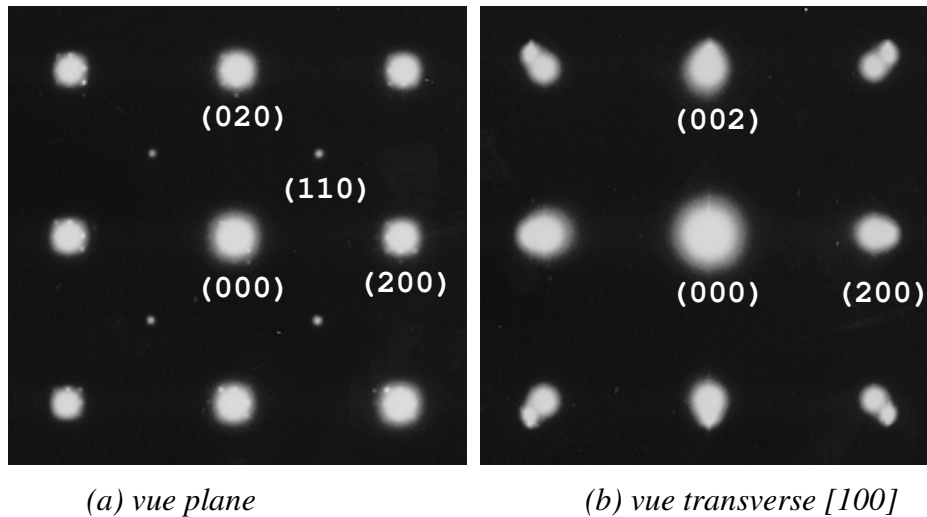


Fig. II.15 : Clichés de diffraction électronique de l'échantillon C/C-RHEED.

4) Microscopie Electronique en Transmission : résumé

Les observations par microscopie électronique montrent que les couches minces d'alliage sont de structure cubique à faces centrées, épitaxiée sur la couche tampon Pd. Les taches de surstructure de type [110] sur les échantillons en vue plane mettent en évidence la mise en ordre chimique de l'alliage dans la structure $L1_0$, pour certains échantillons :

- les échantillons C-TA et C-TA/R-420 sont désordonnés ;
- l'échantillon C/C-TEMPS présente un ordre chimique local ;
- l'échantillon C/C-RHEED a un degré d'ordre partiel ;
- l'échantillon C-350 apparaît très ordonné.

De plus, seul le variant de la structure ordonnée ayant son axe de symétrie d'ordre 4 suivant la perpendiculaire au plan de la couche mince est présent.

L'étude par microscopie conventionnelle a permis de visualiser des défauts dans l'échantillon codéposé à 350°C : des macles et des parois d'antiphase dans la structure ordonnée.

B - Diffraction des rayons X

La diffraction de rayons X fournit de nombreuses informations sur la structure cristalline des couches minces. Nous avons pu déduire des mesures de diffraction aux grands angles les paramètres de maille des structures et également le degré d'ordre chimique à longue distance. Le diffractomètre utilisé est schématisé sur la figure II.16. Nous expliquons brièvement le principe des mesures, puis nous présentons les résultats.

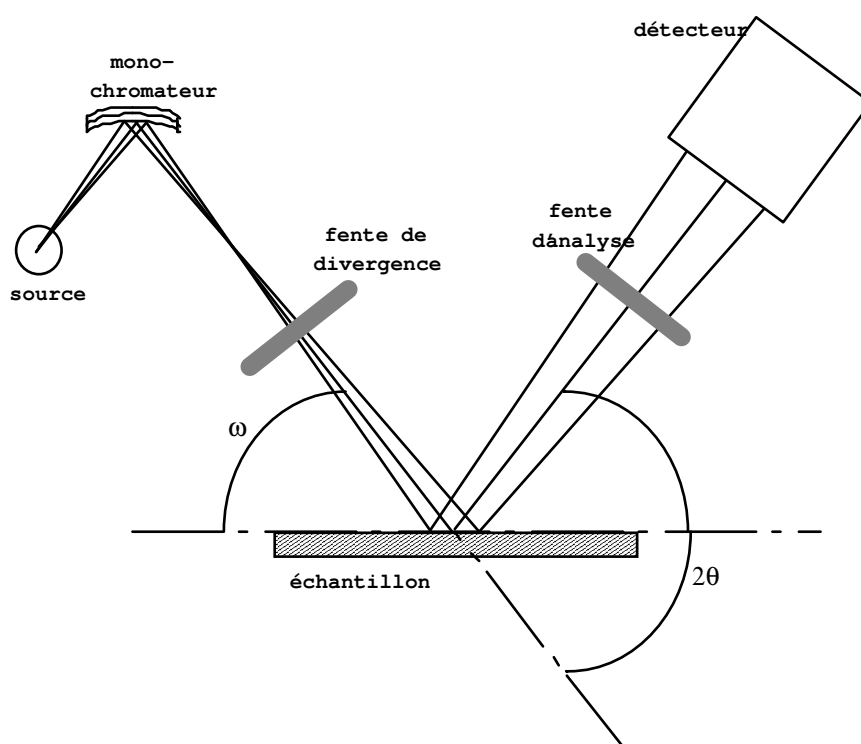


Fig. II.16 : Schéma de l'expérience de diffraction de rayons X.

1) Principe

Nous considérons la diffusion des rayons X par les plans (hkl) d'une structure cristalline. La longueur d'onde du faisceau de rayons X est λ (expérimentalement, nous utilisons la raie d'émission du cuivre : $\lambda=1.5418 \text{ \AA}$). La distance inter-réticulaire entre les plans (hkl) est notée d_{hkl} . Si l'angle d'incidence sur ces plans est θ , les interférences entre les ondes diffusées sont constructives et donnent lieu à une intensité diffractée dans la direction θ (Fig. II.16) si θ obéit à la loi de Bragg :

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta.$$

II.1

Dans notre cas, nous étudions des structures cubiques déformées en structures tétragonales par épitaxie sur le substrat. Les paramètres de maille sont $a_{//}$ dans le plan de la couche et a_{\perp} dans la direction perpendiculaire et la distance inter-réticulaire s'écrit :

$$d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{\frac{h^2 + k^2}{a_{//}^2} + \frac{l^2}{a_{\perp}^2}}} \quad \text{II.2}$$

Nous rappelons que pour une structure cubique à faces centrées, l'intensité diffractée est non nulle à la condition que h, k et l soient de même parité.

a) Mesure des paramètres de maille

En appliquant la relation de Bragg à des raies obliques du type $(\bar{1}\bar{1}3)$, nous obtenons une mesure des paramètres de maille dans le plan de la couche mince et dans la direction perpendiculaire. Pour obtenir une bonne précision, nous avons mesuré des cartes d'intensité dans le plan $(1\bar{1}0)$ de l'espace réciproque, autour des positions des raies $(\bar{1}\bar{1}3)$ et nous cherchons la position du maximum d'intensité diffractée en ajustant une fonction quadratique sur le sommet du pic.

b) Mesure du paramètre d'ordre à longue distance

- Définition du paramètre d'ordre à longue distance S

Le paramètre S, caractérisant l'ordre à longue distance, s'exprime par :

$$S = n_{Fe} - n_{Pd} \quad \text{II.3}$$

où n_{Fe} (resp. n_{Pd}) est le taux d'occupation par les atomes de fer des sites du sous-réseau de fer (resp. sous-réseau de palladium).

Selon cette définition, à la composition équiatomique, S est égal à 0 pour la phase désordonnée et S vaut 1 pour la phase $L1_0$ parfaitement ordonnée avec son axe c suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche mince.

- Principe de la mesure du paramètre S

La mesure de l'intensité diffractée dans l'espace réciproque le long de la direction perpendiculaire au plan de la couche mince permet d'évaluer le paramètre d'ordre à longue distance suivant cette direction. Considérons une couche mince d'alliage ordonné dans la structure $L1_0$ telle que l'axe c de la structure ordonnée est aligné sur la direction de croissance $[001]$ de la couche mince. Les réflexions $(00l)$ avec l pair sont dites fondamentales car elles correspondent à la structure cubique à faces centrées. La mise en ordre chimique donne lieu à des raies supplémentaires, dites de surstructure, aux positions $(00l)$ avec l impair, qui sont interdites dans la structure cubique à faces centrées. Le degré d'ordre à longue distance peut être évalué à partir du rapport des intensités intégrées d'une raie fondamentale et d'une raie de surstructure [WAR 90].

En effet, l'intensité intégrée, égale à l'aire sous un pic de diffraction, s'exprime par

$$A \propto LP(\theta) \times FF_{hkl}^* / \sin \theta \quad \text{II.4}$$

où :

- le terme $1/\sin \theta$ prend en compte l'effet de couche mince : le volume irradié qui contribue au signal diffracté est proportionnel à la surface irradiée.
- $LP(\theta)$ est le facteur de Lorentz-Polarisation. Ce facteur dépend de l'angle d'incidence θ et de l'angle α du monochromateur (dans notre cas, le monochromateur est un cristal de graphite dont les plans diffractants sont ceux du type $\{111\}$: $\alpha=13,29^\circ$). Le facteur de Lorentz-polarisation rend compte de l'effet de la polarisation partielle du faisceau par le monochromateur et de la manière dont la raie considérée coupe la sphère d'Ewald :

$$LP(\theta) = \left[1 + \cos^2(2\theta) \times \cos^2(2\alpha) \right] \left[1 + \cos^2(2\alpha) \right] / \sin(2\theta). \quad \text{II.5}$$

- FF^*_{hkl} est le facteur de structure de la raie considérée.

Les facteurs de structure d'une maille, pour une raie fondamentale et une raie de surstructure, s'écrivent respectivement :

$$FF^*_{\text{fond}} = 4 \left[\left(f_{\text{Fe}} e^{-M} + f_{\text{Pd}} e^{-M} \right)^2 + \left(\Delta_{\text{Fe}} e^{-M} + \Delta_{\text{Pd}} e^{-M} \right)^2 \right] \quad \text{II.6}$$

$$FF^*_{\text{sur}} = 4S^2 \left[\left(f_{\text{Fe}} e^{-M} - f_{\text{Pd}} e^{-M} \right)^2 + \left(\Delta_{\text{Fe}} e^{-M} - \Delta_{\text{Pd}} e^{-M} \right)^2 \right] \quad \text{II.7}$$

- M est le facteur de Debye-Waller, qui est relié au paramètre de Debye-Waller B par la relation : $M = B \times (\sin \theta / \lambda)^2$. II.8

Nous avons considéré $B_{\text{Fe}}=B_{\text{Pd}}=B$.

- f_{Fe} , f_{Pd} et Δ_{Fe} , Δ_{Pd} sont les parties réelles et imaginaires des facteurs de diffusion atomiques pour le fer et le palladium. Nous avons utilisé les valeurs reportées dans la Table II.1, extraites de la littérature [INT 68a].
- S est le paramètre caractérisant l'ordre à longue distance.

Ainsi, le degré d'ordre à longue distance S peut être évalué directement à partir du rapport des intensités intégrées d'une raie fondamentale et d'une raie de surstructure. Expérimentalement, nous avons considéré les raies fondamentales (002) et (004) et les raies de surstructure (001) et (003). Nous avons pu ainsi ajuster à la fois le paramètre S et le paramètre de Debye-Waller sur les mesures.

indices (hkl) de la raie	(001)	(002)	(003)	(004)
angle 2θ (degrés)	~ 24.5	~ 50.0	~ 78.5	~ 114.5
$\sin \theta / \lambda$	0.14	0.27	0.41	0.55
f_{Pd}	39.87	22.37	26.45	22.11
f_{Fe}	21.05	16.20	12.72	10.24
Δ_{Pd}	4.2	4.2	4.2	4.2
Δ_{Fe}	3.4	3.4	3.3	3.3

Table II.1 : Coefficients de diffusion atomiques pour Fe et Pd [INT 68a]

D'un point de vue expérimental, les conditions de mesure doivent être adaptées pour que le détecteur intègre toute l'intensité diffractée. Il faut veiller à ouvrir au maximum les fentes arrière, situées entre l'échantillon et le détecteur, et le détecteur doit être fixé le plus près possible de l'échantillon (dans notre cas, cette distance était égale à 200 mm). Nous avons effectué les mesures avec un monochromateur placé en amont de l'échantillon car celui-ci situé en arrière agirait comme une fente très fine. Malgré le soin apporté au choix des conditions de mesures, des tests ont montré que toute l'intensité n'est pas intégrée par le détecteur. Les effets sur la valeur finale du paramètre d'ordre sont en partie compensés par l'ajustement du facteur de Debye-Waller. L'incertitude sur la valeur de S est évaluée à $\pm 10\%$. Pour une mesure plus précise, des modifications du montage expérimental sont nécessaires.

2) Mesures

Nous avons mesuré, à température ambiante, les spectres de diffraction de rayons X sur les échantillons élaborés suivant les procédures décrites au Chapitre I :

- C-TA : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante)
- C-TA/R-420 : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante, suivie par un recuit de 10 minutes à 420°C)
- C-350 : épaisseur 50 nm (codéposition à 350°C)
- C/C-TEMPS : épaisseur 50 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt)
- C/C-RHEED : épaisseur 10 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED)

a) Spectres θ - 2θ le long de la direction (00l) de l'espace réciproque : mesure du paramètre d'ordre à longue distance

La figure II.17 correspond aux spectres θ - 2θ aux grands angles : elle représente l'intensité diffractée dans le réseau réciproque suivant la direction [001] des structures cristallines et expérimentalement nous avons aligné le goniomètre sur la direction [001] de la structure du palladium. Nous avons vérifié que cette direction s'écarte au plus de 0.1° de la direction normale au plan de la couche mince.

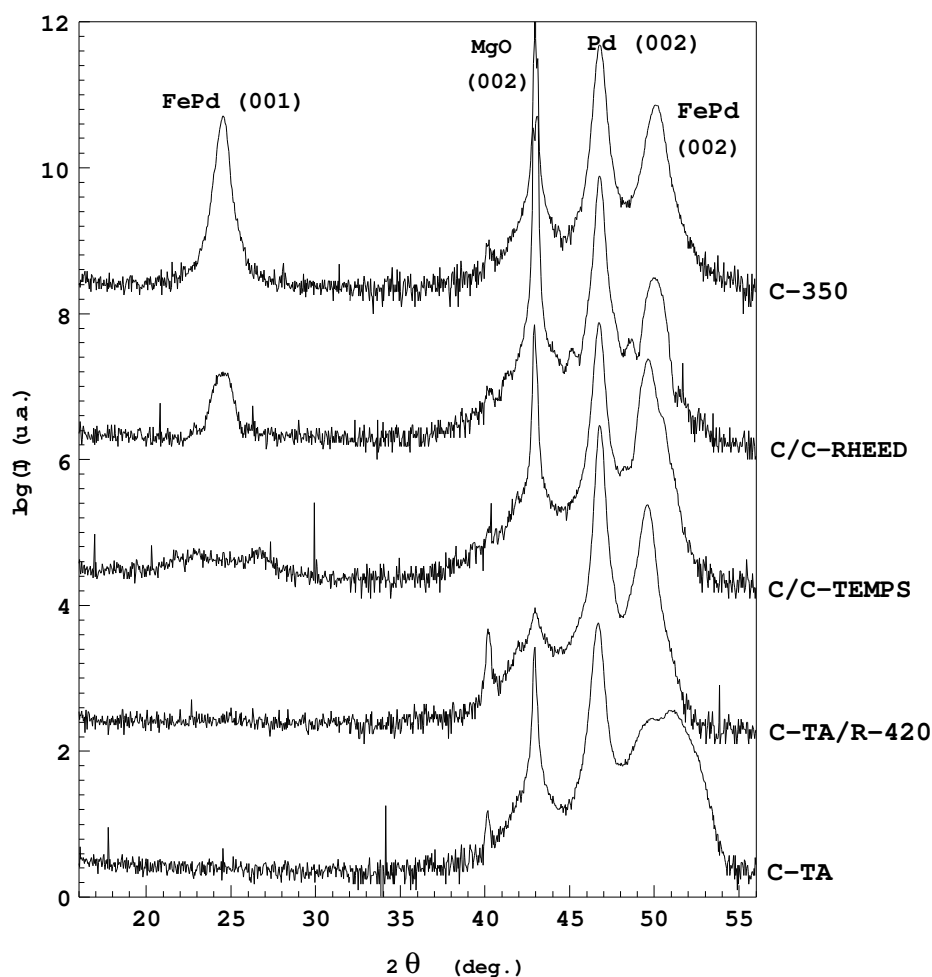


Fig. II.17 : Spectres θ - 2θ de diffraction de rayons X le long de la direction $[001]$ de l'espace réciproque, c'est-à-dire la direction de croissance. Le pic (002) pour le substrat MgO, la couche tampon Pd et la couche d'alliage FePd correspond à la réflexion fondamentale de la structure cubique à faces centrées. Le pic (001) pour les couches d'alliage FePd résulte de la mise en ordre chimique de type $L1_0$, l'axe c de la structure ordonnée étant perpendiculaire au plan du film.

Pour les différents échantillons, les réflexions (002) pour le substrat MgO, la couche tampon Pd et la couche d'alliage FePd sont caractéristiques de la structure cubique à faces centrées. L'intensité diffractée par le substrat MgO peut paraître faible, en particulier pour l'échantillon C-TA/R-420. Nous rappelons que le goniomètre est aligné sur la direction $[001]$ de la structure du palladium. Nous trouvons expérimentalement que cette direction n'est pas exactement parallèle à la direction $[001]$ de la structure du substrat MgO dont les taches de diffraction sont peu étalées dans l'espace réciproque en raison de sa grande qualité cristalline. Ceci explique la faible intensité des raies du substrat MgO.

Le petit pic de diffraction qui apparaît à la position $2\theta \approx 40^\circ$ correspond à la raie (111) du palladium. Sa présence révèle l'existence de zones désorientées dans la couche tampon Pd. Nous ne pouvons pas vérifier si ceci a conduit à la croissance de l'alliage

FePd suivant la direction [111] car le pic de diffraction correspondant se superpose avec la raie (002) du substrat MgO à la position $2\theta \approx 43^\circ$. Cependant, l'intensité du pic (111) du palladium est faible, ce qui montre que la proportion de zones désorientées dans la couche tampon Pd est peu importante. Nous pouvons en conclure qu'il en est de même pour l'alliage FePd.

La présence d'une raie (001) pour l'alliage FePd est caractéristique de l'ordre L1₀ avec l'axe c suivant la normale au plan de la couche mince. Nous avons reporté dans la table II.2 les paramètres d'ordre S ainsi que les paramètres de Debye-Waller B résultant du rapport des intensités intégrées des raies fondamentales et de surstructure.

	B (Å ²)	S
C-TA	3.02	0.00
C-TA/R-420	1.53	0.00
C/C-TEMPS	1.65	0.08
C/C-RHEED	2.34	0.23
C-350	2.41	0.79

Table II.2 : Paramètre de Debye-Waller B et paramètre d'ordre à longue distance S résultant du rapport des intensités intégrées des raies fondamentales et de surstructure. La précision sur la mesure de S est évaluée à $\pm 10\%$.

- Paramètres de Debye-Waller

Les paramètres de Debye-Waller obtenus sont plus grands que les paramètres mesurés sur des échantillons massifs des métaux purs Fe et Pd et reportés dans la littérature (0.49 Å² pour le fer et 0.46 Å² pour le palladium à 293 K [INT 68b]). Ils sont également plus élevés que les paramètres de Debye-Waller B calculés à partir des températures de Debye θ_D [INT 68b], qui ont été mesurées par Kuang et al. [KUA 88] sur l'alliage FePd de structure désordonnée ($\theta_D=310$ K d'où $B=0.45$ Å²) ou ordonnée ($\theta_D=385$ K d'où $B=0.29$ Å²). Les valeurs élevées que nous avons mesurées peuvent résulter d'une contribution importante du paramètre de Debye-Waller statique, dans les couches minces épitaxiées.

Nous avons vérifié que l'erreur que nous pourrions commettre sur la mesure du paramètre B ne fausse pas la valeur finale du paramètre d'ordre. Par exemple, pour l'échantillon C-350, des valeurs arbitraires de paramètres de Debye-Waller 0.20 Å² et 5.00 Å² donnent respectivement des paramètres d'ordre égaux à 0.89 et 0.68. Cet écart se situe dans la barre d'incertitude sur la mesure de S, évaluée à $\pm 10\%$.

- Paramètres d'ordre à longue distance

La mesure du paramètre d'ordre montre que l'échantillon C-350 est celui qui a le degré d'ordre chimique le plus élevé : $S=0.79$. Nous rappelons que d'après la définition du paramètre d'ordre à longue distance, cette valeur correspond à une concentration atomique en atomes de fer sur le sous-réseau de fer : $n_{Fe} \approx 0.9$, et sur le sous-réseau de palladium : $n_{Pd} \approx 0.1$. Pour ce type d'échantillon codéposé à 350°C, le paramètre d'ordre a été mesuré pour différentes épaisseurs de couche, variant entre 5 et 50 nm. Nous n'avons pas trouvé de différence significative : le paramètre d'ordre est indépendant de l'épaisseur de la couche mince.

L'échantillon C/C-RHEED présente une raie de surstructure bien définie à la position (001). L'intégration de l'intensité diffractée montre que cet échantillon a un degré d'ordre partiel : $S=0.23$.

L'échantillon C/C-TEMPS présente une modulation de l'intensité diffractée autour de la position de la raie (001). Plus précisément, nous pouvons observer deux maxima situés de part et d'autre de la position (001). Cet effet a déjà été observé [DYN 97, MIT 97]. Le dédoublement du pic de surstructure résulte du décalage entre l'ouverture des évaporateurs et la complétion des couches atomiques : nous avons préparé une multicouche avec un nombre non entier de couches atomiques, du type $\text{Fe}(1+\delta)/\text{Pd}(1+\delta)$ avec $\delta \neq 0$. Suivant le formalisme de Mitani [MIT 97], la position d'un pic de surstructure $q_s = 2\pi \cdot 2 \sin \theta / \lambda$ est donnée par la relation :

$$q_s = 2\pi \cdot m/d_{002} + 2\pi \cdot n/\Lambda \quad \text{II.9}$$

où m et n sont des entiers et $\Lambda = 2d_{002}(1 + \delta)$ est la longueur d'onde de la modulation. Les valeurs $m=0$ et 1 correspondent aux pics fondamentaux (000) et (002). Le paramètre n correspond à l'ordre du pic satellite associé à la surstructure ; les $n^{\text{ième}}$ pics "satellites" autour des pics fondamentaux (000) et (002) sont respectivement notés $(000)^n$ et $(002)^n$. Pour la structure $L1_0$ parfaite, $\delta=0$ et $\Lambda=2d_{002}$: la position du pic $(000)^{+1}$ coïncide avec la position du pic $(002)^{-1}$ pour donner le pic de surstructure (001). Dans le cas d'un nombre fractionnaire de couches atomiques ($\delta \neq 0$), la position des deux pics ne coïncide plus : nous observons alors deux pics distincts et la position de ces pics permet d'évaluer Λ et donc δ .

Pour l'échantillon C/C-TEMPS, l'écart entre la position des deux pics satellites est $\Delta 2\theta \approx 4^\circ$. Nous trouvons $\Lambda=4.0 \text{ \AA}$ et $\delta=0.1$: chaque ouverture de caches correspond au dépôt de 1.1 monocouche d'atomes. Nous retrouvons ici la valeur déterminée en comparant les oscillations RHEED à la séquence d'ouverture des caches (cf. I.C.2). L'intégration de l'intensité diffractée sous les deux pics satellites permet d'estimer en première approximation le paramètre d'ordre à longue distance. Nous trouvons une valeur très faible : $S=0.08$.

Les échantillons C-TA et C-TA/R-420 ne présentent pas de raies de surstructure (001) : ils sont désordonnés à longue distance. L'effet du recuit n'a pas induit de diffusion en volume suffisante pour conduire au réarrangement des atomes suivant l'ordre de type $L1_0$. L'influence du recuit est toutefois nette sur la largeur des raies qui sont beaucoup plus fines après recuit, aussi bien pour le spectre $\theta-2\theta$ que pour les balayages en ω avec 2θ fixé (balayage de type "rocking curve"). Ceci montre que le traitement de recuit a permis d'éliminer un certain nombre de défauts structuraux et d'augmenter la qualité cristalline de l'échantillon.

b) Cartes d'intensité autour des raies $(\bar{1}\bar{1}3)$: mesure des paramètres de maille dans le plan et perpendiculairement au plan des couches minces

Les paramètres de maille dans le plan des couches minces et dans la direction perpendiculaire ont été évalués sur les cartes d'intensité diffractée dans l'espace réciproque autour des raies obliques de type $(\bar{1}\bar{1}3)$. La figure II.18 présente ces cartes, sur lesquelles apparaissent l'intensité diffractée par les couches tampon Pd et les couches

d'alliage FePd. Les paramètres de maille sont reportés dans le tableau II.3. L'incertitude sur les valeurs de ces paramètres est évaluée à $\pm 0.01 \text{ \AA}$ et elle résulte de la largeur des raies.

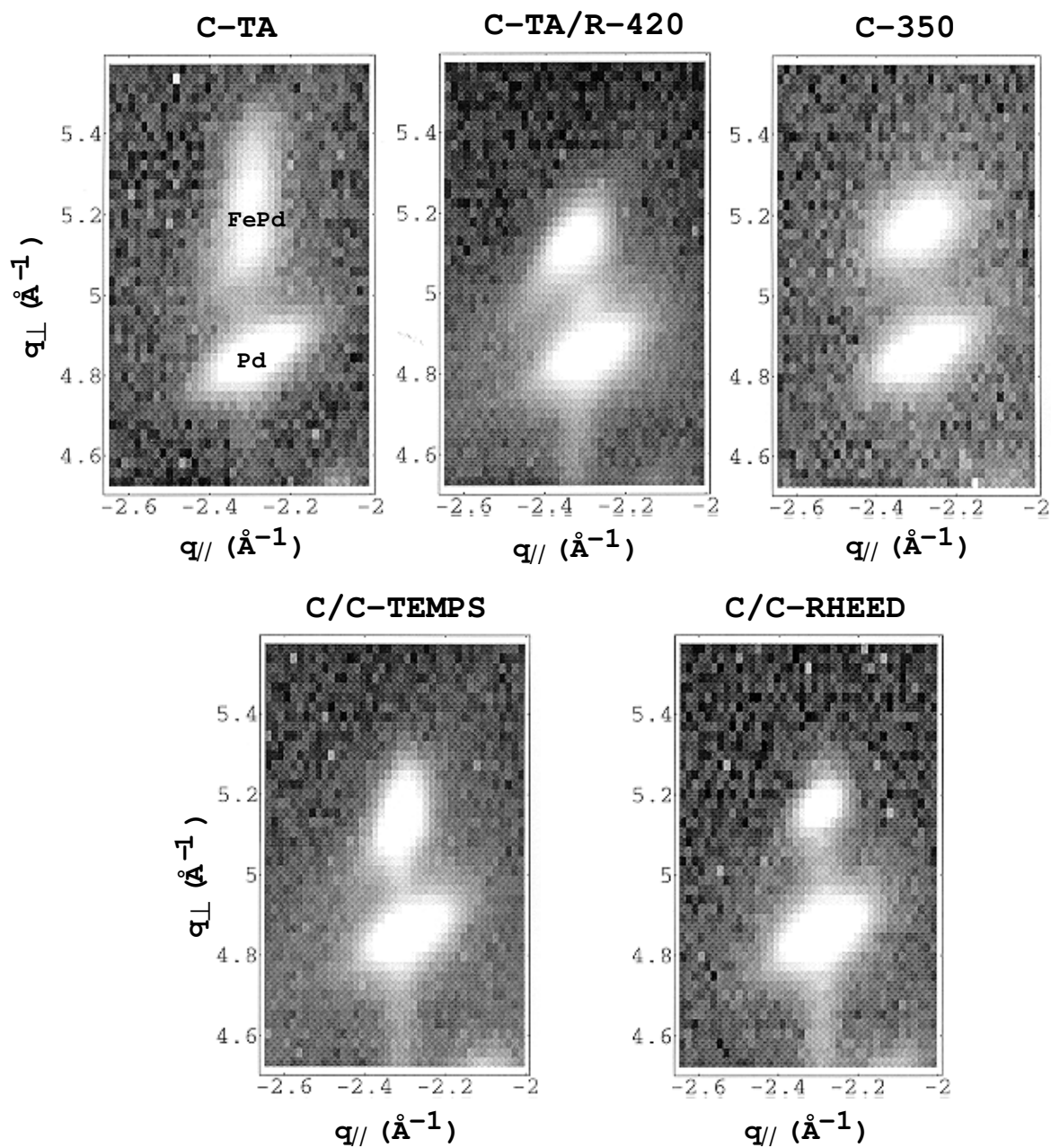


Fig. II.18 : Cartes d'intensité diffractée autour des positions $(\bar{1}\bar{1}3)$ de l'espace réciproque.

	couche tampon Pd		couche d'alliage FePd	
	$a_{//}$ (Å)	a_{\perp} (Å)	$a_{//}$ (Å)	a_{\perp} (Å)
C-TA	3.88	3.89	3.86	3.61
C-TA/R-420	3.88	3.88	3.82	3.68
C/C-TEMPS	3.87	3.88	3.85	3.67
C/C-RHEED	3.88	3.89	3.88	3.65
C-350	3.88	3.88	3.88	3.65

Table II.3 : Paramètres de maille mesurés dans le plan ($a_{//}$) et perpendiculairement au plan (a_{\perp}) des couches minces, pour la couche tampon Pd et la couche d'alliage FePd. L'incertitude sur les valeurs de ces paramètres est évaluée à ± 0.01 Å.

Pour comparaison, nous rappelons que le palladium à l'état massif est de structure cubique à faces centrées avec un paramètre de maille $a=3.89$ Å [PEA 64]. La phase désordonnée γ de l'alliage FePd est également de structure cubique à faces centrées, avec un paramètre de maille $a=3.80$ Å [PEA 64]. La structure ordonnée de type $L1_0$ de l'alliage FePd est tétragonale avec un paramètre de maille dans le plan $a_{//}=3.85$ Å et hors du plan $a_{\perp}=3.72$ Å [PEA 64].

Pour tous les échantillons, les mesures montrent que la couche tampon de palladium est de structure cubique et son paramètre de maille est celui du palladium massif : l'épaisseur de 60 nm et la procédure de recuit à 420°C pendant 10 minutes permettent d'obtenir la relaxation des contraintes épitaxiales.

Les couches minces d'alliage FePd sont quant à elles contraintes sur les couches tampon Pd, sauf pour l'échantillon C-TA/R-420. Les structures sont tétragonales : $a_{//}$ est plus petit que a_{\perp} . La tétragonalité résulte à la fois des contraintes épitaxiales (les structures sont contraintes, en tension sur la couche tampon Pd) mais aussi de la mise en ordre chimique de type $L1_0$, le cas échéant.

3) Diffraction des rayons X : résumé

Les couches minces d'alliage FePd sont de structure tétragonale, elles sont contraintes sur les couches tampon Pd. Selon le critère de l'ordre à longue distance caractérisant la structure $L1_0$, les échantillons peuvent être classés du moins au plus ordonné de la façon suivante :

- C-TA, C-TA/R-420 et C/C-TEMPS : ordre à longue distance négligeable ;
- C/C-RHEED : degré d'ordre à longue distance partiel ;
- C-350 : degré d'ordre à longue distance élevé.

Le tableau II.4 résume les paramètres mesurés par la diffraction de rayons X.

	$a_{//}$ (Å)	a_{\perp} (Å)	S
C-TA	3.86	3.61	0.00
C-TA/R-420	3.82	3.68	0.00
C/C-TEMPS	3.85	3.67	0.08
C/C-RHEED	3.88	3.65	0.23
C-350	3.88	3.65	0.79

Table II.4 : Paramètres de maille moyen mesurés par diffraction de rayons X dans le plan ($a_{//}$) et perpendiculairement au plan (a_{\perp}) des couches minces et paramètre d'ordre à longue distance (S). Les paramètres de maille sont donnés avec une précision de ± 0.01 Å et le paramètre d'ordre à longue distance (S) est donné avec une précision de $\pm 10\%$.

C - Spectroscopie EXAFS

L'EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) est une technique spectroscopique d'absorption sensible à l'ordre à courte distance. Elle permet d'obtenir des informations sur la nature chimique, le nombre et la distance interatomique des plus proches voisins de l'atome absorbeur. En utilisant les propriétés de polarisation du faisceau synchrotron, nous avons pu caractériser l'ordre local directionnel dans les couches minces d'alliage FePd.

1) Principe

a) Principe général de la spectroscopie EXAFS

La spectroscopie d'absorption X permet de sonder l'ordre local autour d'un atome d'une espèce chimique donnée. Un spectre d'absorption présente en effet des oscillations qui suivent le saut du seuil d'absorption. L'origine de ces oscillations résulte du processus suivant : à la suite de l'absorption, l'atome sondé émet un photoélectron, que l'on peut considérer comme une onde sphérique. Cette onde est rétrodiffusée par les atomes voisins et elle revient interférer au site de l'atome sondé avec l'onde sortante. Les interférences seront constructives ou destructives selon le déphasage existant entre les deux ondes (qui dépend notamment de la distance séparant l'atome central de l'atome rétrodiffuseur et de la nature chimique des deux atomes) et selon l'énergie cinétique du photon.

Les premières oscillations suivant le seuil d'absorption sont dénommées XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure). Ce domaine correspond à un régime de diffusion multiple du photoélectron. L'interprétation de ces oscillations est difficile car elle fait intervenir un grand nombre de paramètres. Au delà de quelques dizaines d'électron-volt au dessus du seuil d'absorption (typiquement 30-50 eV), les oscillations sont dénommées EXAFS. Dans ce domaine, les oscillations résultent principalement de processus de diffusion simple. Des modèles existent pour procéder à une analyse quantitative des spectres [STE 88]. Les oscillations EXAFS s'obtiennent à partir de la mesure de la section efficace d'absorption, en fonction de l'énergie E [FON 89] :

$$\sigma(E) = \sigma_0(E) \times [1 + \chi(E)] \quad \text{II.10}$$

avec $\sigma_0(E)$ section efficace d'absorption de l'atome isolé,
 $\chi(E)$ paramètre décrivant les oscillations EXAFS,
 $E = \hbar\omega - E_0$ $\hbar\omega$ est l'énergie du photon incident,
 E_0 est proche de l'énergie du seuil d'absorption.

Dans le cas de l'approximation de l'onde plane et si les processus multi-électroniques et les effets de diffraction multiples sont négligés, le modèle couramment utilisé donne:

$$\chi(k) = -\frac{1}{k} \sum_j \frac{N_j}{R_j^2} \cdot \exp[-2\sigma_j^2 k^2] \exp\left[-2\frac{R_j}{\Lambda(k)}\right] \cdot |f_j(\pi, k)| \cdot \sin[\psi_j(R_j, k)] \quad \text{II.11}$$

$$\text{où } \psi_j(R_j, k) = 2kR_j + 2\delta_l(k) + \arg[f_j(\pi, k)] \quad \text{II.12}$$

avec	N_j	nombre de coordination,
	$f_j(\pi, k)$	amplitude complexe de rétrodiffusion,
	k	vecteur d'onde,
	R_j	position de l'atome réflecteur j par rapport à l'atome absorbeur,
	σ_j	facteur de Debye-Waller de l'atome j ,
	$\Lambda(k)$	libre parcours moyen du photo-électron,
	δ_1	déphasage dû à la traversée du potentiel de l'atome émetteur.

L'analyse du signal EXAFS permet ainsi de connaître le nombre de coordination de l'atome sondé, la nature chimique de ses proches voisins, et la distance interatomique. Cette technique nécessite l'utilisation d'un rayonnement X monochromatique à longueur d'onde variable que l'on trouve, sous de très fortes intensités, auprès des sources de rayonnement synchrotron.

b) La spectroscopie EXAFS en faisceau polarisé

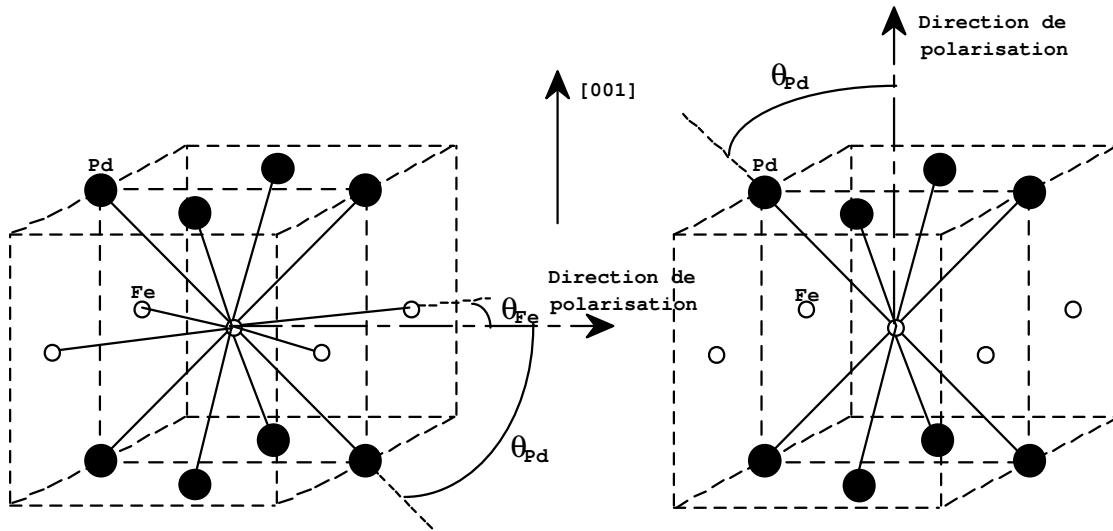
La spectroscopie d'absorption polarisée est une technique très utile pour étudier l'anisotropie locale des structures cristallines. Comme le rayonnement synchrotron est polarisé linéairement dans le plan de l'anneau de stockage, la formule classique de l'EXAFS isotrope doit être exprimée avec le nombre de coordination effectif suivant :

$$N_j^* = \sum_i 3 \cos^2 \theta_j^i \quad \text{II.13}$$

où la somme sur l'indice i est la somme sur les N_j atomes de la sphère des $j^{\text{ièmes}}$ voisins, θ_j^i est l'angle entre le vecteur de polarisation et le vecteur qui relie l'atome absorbant au $i^{\text{ième}}$ atome de la $j^{\text{ième}}$ sphère.

La contribution d'un atome voisin est ainsi pondérée par le carré du cosinus de l'angle entre le vecteur de polarisation et le vecteur qui relie l'atome absorbant à l'atome voisin considéré. Dans le cas de films épitaxiés, il est ainsi possible de sonder la structure atomique locale dans le plan de la couche ou perpendiculairement à celui-ci, en orientant la surface de l'échantillon respectivement parallèlement ou perpendiculairement au vecteur de polarisation. Les atomes voisins de l'atome central contribuent alors au signal EXAFS avec un poids différent selon qu'ils sont voisins de l'atome central dans le plan de la couche mince ou en dehors du plan. Considérons par exemple une couche mince d'un matériau de structure cubique à faces centrées, d'axe [001] normal au plan de la couche. Quand la surface de l'échantillon est parallèle au vecteur de polarisation du rayonnement synchrotron, les 8 atomes voisins de l'atome central hors du plan sont observés avec un poids de 6 ($N_1(\text{hors})=8$ et $N_1^*(\text{hors})=6$) et les 4 atomes voisins dans le plan sont observés avec un poids de 6 ($N_1(\text{plan})=4$ et $N_1^*(\text{plan})=6$). Quand la surface de l'échantillon est perpendiculaire au vecteur de polarisation, les 8 atomes voisins hors du plan sont observés avec un poids de 12 ($N_1(\text{hors})=8$ et $N_1^*(\text{hors})=12$) et les 4 atomes voisins dans le plan ne contribuent pas au signal EXAFS ($N_1(\text{plan})=4$ et $N_1^*(\text{plan})=0$). De même, pour une structure tétragonale à faces centrées, de paramètre a_{\perp} suivant l'axe [001] plus petit que a_{\parallel} (comme pour la phase $L1_0$) : quand la surface de l'échantillon est parallèle au vecteur de polarisation du rayonnement synchrotron, les 4 atomes dans le plan sont observés avec un

poids de 6 et les 8 atomes hors du plan sont observés avec un poids légèrement supérieur à 6 ; quand la surface de l'échantillon est perpendiculaire au vecteur de polarisation, les 8 atomes hors du plan sont observés avec un poids légèrement inférieur à 12 (Fig. II.19).



(a) polarisation dans le plan

(b) polarisation perpendiculaire au plan

Fig. II.19 : Représentation des atomes sondés autour d'un atome central Fe, dans la structure Ll_0 parfaitement ordonnée. Les atomes Pd et Fe sont représentés respectivement en noir et blanc. (a) Avec la polarisation du faisceau dans le plan des couches, les 4 atomes Fe dans le plan sont observés avec un poids de 6 et les 8 atomes Pd hors du plan sont observés avec un poids légèrement plus grand que 6. (b) Avec la polarisation du faisceau perpendiculaire au plan des couches, les 8 atomes Pd hors du plan sont observés avec un poids légèrement inférieur à 12.

2) Mesures et analyse des spectres

Les échantillons caractérisés par EXAFS sont les suivants :

- C-TA : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante)
- C-TA/R-420 : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante, suivie par un recuit de 10 minutes à 420°C)
- C-350 : épaisseur 50 nm (codéposition à 350°C)
- C/C-TEMPS : épaisseur 50 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt)
- C/C-RHEED : épaisseur 10 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED)

a) Conditions de mesures et procédure d'analyse des spectres

Les couches minces d'alliage ont été étudiées à température ambiante au seuil K du fer (7112 eV) en faible incidence (environ 2°) sur la ligne 9.3 du synchrotron de Daresbury (Royaume Uni). Cette ligne, construite à partir d'un wiggler, délivre un flux important de rayons X et un fort taux de polarisation linéaire.

Il existe différentes techniques pour la mesure du signal EXAFS. En raison de la présence des substrats, nous ne pouvons pas utiliser le faisceau transmis. Les deux autres possibilités de mesure sont la détection du rayonnement de fluorescence X et la détection des électrons émis à la suite de l'absorption. Nous avons choisi de détecter le signal de fluorescence X, car la ligne que nous avons utilisée est équipée d'un détecteur de fluorescence qui possède un excellent rapport signal sur bruit grâce à sa résolution en énergie (résolution de 100 eV à 10 keV). Ce détecteur est composé de 13 éléments en Germanium. Les couches minces étudiées étant monocristallines, nous avons profité de la subdivision du détecteur en 13 éléments pour éviter la contribution des pics de Bragg : les signaux des différents éléments ont été sommés après élimination des spectres contenant des pics de diffraction (Fig. II.20).

- Séparation de la contribution des premiers voisins

La contribution aux spectres EXAFS expérimentaux d'une paire d'un atome absorbant et de son voisin faiblit avec la distance entre ces deux atomes. C'est la contribution des premiers voisins qui est prépondérante et nous avons limité notre analyse à cette contribution. Pour isoler la contribution des premiers voisins sur les spectres expérimentaux, nous avons sélectionné les premiers pics dans l'espace de Fourier, de la façon décrite ci-après.

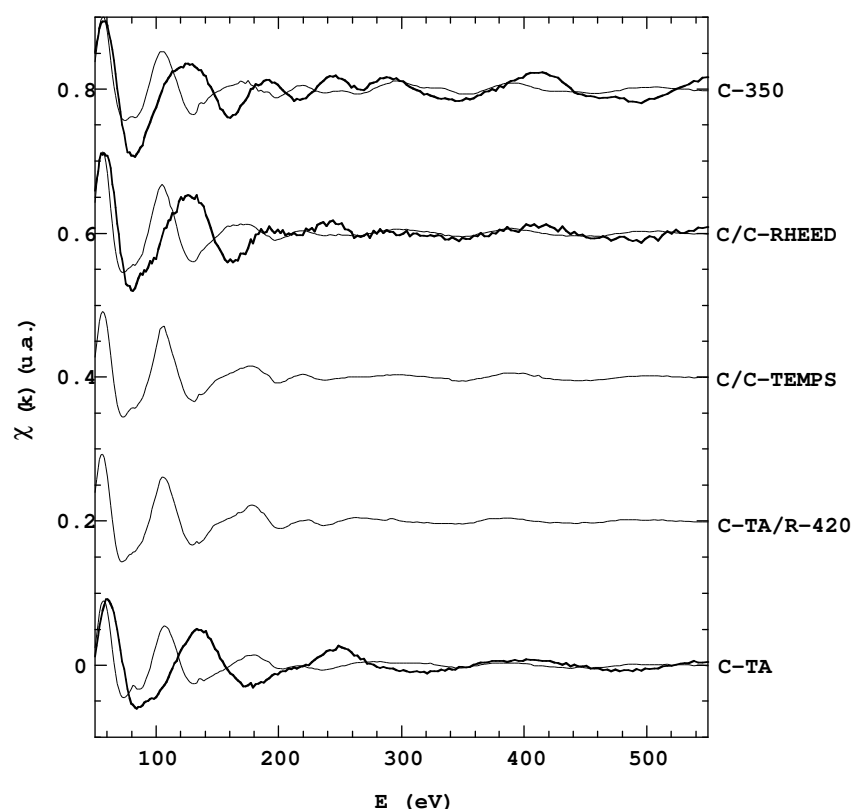


Fig. II.20 : Signal EXAFS $\chi(k)$. Les spectres en trait fin (resp. gras) correspondent à la mesure avec la polarisation du faisceau dans le plan (resp. hors du plan) des couches minces.

L'analyse des mesures expérimentales a été faite avec le programme EXCURV92 développé par le laboratoire de Daresbury [GUR 84]. Le fond du spectre d'absorption a été soustrait par ajustement linéaire de la courbe avant le seuil et ajustement par une fonction polynomiale après le seuil. L'énergie E_0 du seuil a été choisie au point d'inflexion du seuil K du Fe. Les transformées de Fourier de la quantité $k^3 \times \chi(k)$ ont été calculées dans le domaine 4 - 13 Å⁻¹, et sont présentées sur la figure II.21, sans correction de la phase. Nous avons sélectionné les premiers pics, dans le domaine 1.5 - 3.5 Å de l'espace de Fourier, en multipliant les spectres par une fonction gaussienne. Puis, la transformée de Fourier inverse a été recalculée. Les spectres EXAFS ainsi obtenus dans la géométrie perpendiculaire correspondent à la contribution des premiers voisins Fe et Pd le long des directions $\langle 011 \rangle$, soient deux sphères de premiers voisins si l'on distingue les distance Fe-Fe des distances Fe-Pd. Les spectres obtenus dans la configuration planaire correspondent à la contribution des premiers voisins de Fe et Pd dans le plan (001) et le long des directions $\langle 011 \rangle$, soient 4 sphères de premiers voisins.

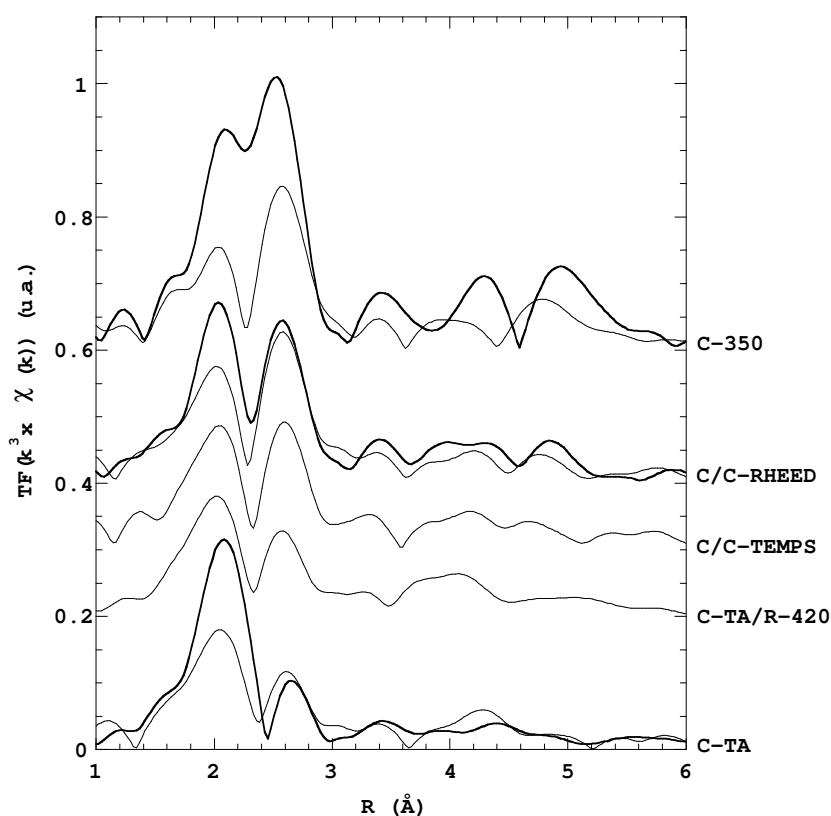


Fig. II.21 : Transformées de Fourier de la quantité $k^3 \times \chi(k)$, où $\chi(k)$ est le signal EXAFS mesuré. Les courbes en trait fin (resp. gras) correspondent à la mesure avec la polarisation du faisceau dans le plan (resp. hors du plan) des couches minces.

- Ajustement des spectres expérimentaux sur un modèle

Les spectres expérimentaux correspondant à la contribution des premiers voisins ont été ajustés sur un modèle en utilisant des déphasages théoriques calculés par le programme EXCURV92. La validité des données théoriques concernant les liaisons Fe-Fe a été vérifiée expérimentalement sur un échantillon de fer, de structure cubique à faces centrées. Pour chaque spectre, l'énergie de référence doit être ajustée ainsi que la

contribution de chaque premier voisin qui dépend de trois paramètres : le nombre de coordination effectif N^* , la distance R entre l'atome Fe absorbant et son voisin (Fe ou Pd) et le facteur de Debye Waller σ . Les résultats de l'ajustement sont reportés dans le tableau II.5.

La procédure d'ajustement a été réalisée de façon un peu différente, selon que nous disposions des deux mesures, avec la polarisation du faisceau dans le plan et hors du plan des couches minces (échantillons C-TA, C/C-RHEED et C-350), ou seulement

	coordination dans le plan (001)						coordination hors du plan le long des directions $\langle 011 \rangle$					
	voisin Fe			voisin Pd			voisin Fe			voisin Pd		
	N^*_{Fe} (plan)	R_{Fe} (Å)	$2\sigma^2_{Fe}$ (Å ²)	N^*_{Pd} (plan)	R_{Pd} (Å)	$2\sigma^2_{Pd}$ (Å ²)	N^*_{Fe} (hors)	R_{Fe} (Å)	$2\sigma^2_{Fe}$ (Å ²)	N^*_{Pd} (hors)	R_{Pd} (Å)	$2\sigma^2_{Pd}$ (Å ²)
C-TA avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	3.5 -	2.68 -	0.038 -	1.4 -	2.70 -	0.035 -	3.7 7.2	2.55 2.55	0.028 0.028	1.7 3.4	2.60 2.60	0.017 0.017
C-TA/R-420 avec la polarisation : - dans le plan	4.0	2.69	0.041	1.5	2.70	0.030	3.3	2.59	0.023	2.2	2.62	0.016
C/C-TEMPS avec la polarisation : - dans le plan	4.7	2.65	0.038	0.7	2.67	0.024	2.0	2.58	0.023	3.3	2.62	0.018
C/C-RHEED avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	4.2 -	2.68 -	0.036 -	0.9 -	2.68 -	0.018 -	2.2 4.8	2.58 2.58	0.025 0.025	3.4 5.7	2.61 2.61	0.017 0.017
C-350 avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	5.8 -	2.71 -	0.044 -	0.0 -	- -	- -	1.5 2.7	2.56 2.56	0.017 0.017	3.4 7.6	2.62 2.62	0.016 0.016

Table II.5 : Paramètres structuraux obtenus après l'analyse des spectres EXAFS mesurés au seuil K du fer. L'indication " dans le plan " (resp. " hors du plan ") correspond à la mesure pour laquelle la surface de l'échantillon est parallèle (resp. perpendiculaire) au vecteur de polarisation du rayonnement synchrotron. Les spectres EXAFS obtenus dans la géométrie " hors du plan " correspondent à la contribution des voisins Fe et Pd le long des directions $\langle 011 \rangle$. Les spectres EXAFS obtenus dans la géométrie " dans le plan " correspondent à la contribution des voisins Fe et Pd dans le plan (001) et le long des directions $\langle 011 \rangle$ de la structure tétragonale. Les nombres de coordination effectifs $N^*_{Fe(Pd)}$ sont donnés avec une précision de $\pm 10\%$, les distances $R_{Fe(Pd)}$ avec une précision de ± 0.02 Å, et les facteurs de Debye-Waller $2\sigma^2_{Fe(Pd)}$ avec une précision de ± 0.002 Å².

de la mesure avec la polarisation du faisceau dans le plan des couches minces (échantillons C-TA/R-420 et C/C-TEMPS). *

- Pour les échantillons C-TA, C/C-RHEED et C-350, nous disposons de la mesure effectuée avec la polarisation du faisceau de rayons X suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche mince. Comme nous l'avons vu, seuls les voisins hors du plan contribuent au signal EXAFS dans cette configuration, il y a donc moins de paramètres à ajuster pour analyser cette mesure. Pour ces trois échantillons, nous avons donc d'abord analysé cette mesure et ajusté pour cela les paramètres de coordination (N^* , R et σ) des voisins hors du plan. Ensuite, nous avons pris ces paramètres comme point de départ pour l'ajustement du spectre mesuré avec la polarisation du faisceau dans le plan. Pour cet ajustement, nous avons laissé libre les paramètres de coordination dans le plan (N^* , R et σ), ainsi que les nombres de coordination effectif des voisins hors du plan. A la suite de l'ajustement, nous pouvons calculer les nombres de coordination N (Table II.6) à partir des nombres de coordination effectif N^* . Par exemple, pour les voisins de fer :

$$N_{\text{Fe}}(\text{hors}) = 8 \times N^*_{\text{Fe}}(\text{hors}) / (N^*_{\text{Fe}}(\text{hors}) + N^*_{\text{Pd}}(\text{hors})) \quad \text{II.14}$$

$$N_{\text{Fe}}(\text{plan}) = 4 \times N^*_{\text{Fe}}(\text{plan}) / (N^*_{\text{Fe}}(\text{plan}) + N^*_{\text{Pd}}(\text{plan})) \quad \text{II.15}$$

	coordination dans le plan (001)		coordination hors du plan le long des directions <011>	
	$N_{\text{Fe}}(\text{plan})$	$N_{\text{Pd}}(\text{plan})$	$N_{\text{Fe}}(\text{hors})$	$N_{\text{Pd}}(\text{hors})$
C-TA avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	2.86 -	1.14 -	5.48 5.43	2.52 2.57
C-TA/R-420 avec la polarisation : - dans le plan	2.91	1.09	4.80	3.20
C/C-TEMPS avec la polarisation : - dans le plan	3.48	0.52	3.02	4.98
C/C-RHEED avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	3.29 -	0.71 -	3.14 3.66	4.86 4.34
C-350 avec la polarisation : - dans le plan - hors du plan	4.00 -	0.00 -	2.45 2.10	5.55 5.90

Table II.6 : Nombres de coordination dans le plan et hors du plan calculés à partir des nombres de coordination effectifs résultant de l'ajustement des spectres EXAFS expérimentaux.

* Les mesures effectuées dans la géométrie perpendiculaire exigent beaucoup de temps (typiquement 8 heures par spectre). En conséquence, trois échantillons élaborés par des méthodes différentes ont été sélectionnés pour l'étude dans les deux configurations.

Nous avons vérifié que les nombres de coordination effectif N^* hors du plan, obtenus par les deux ajustements (sur les spectres avec la polarisation hors du plan ou dans le plan) donnent des nombres de coordination N hors du plan Fe ou Pd proches.

- Pour les échantillons C-TA/R-420 et C/C-TEMPS, nous ne disposons pas des mesures avec la polarisation du faisceau de rayons X perpendiculaire au plan des couches minces. Pour l'ajustement du spectre correspondant à la polarisation dans le plan, nous avons pris comme point de départ de l'ajustement, les paramètres obtenus pour l'échantillon C-TA (resp. C/C-RHEED) pour l'échantillon C-TA/R-420 (resp. C/C-TEMPS).

b) Résultats de l'analyse

- Distances inter-atomiques

Dans l'ensemble, les distances mesurées par EXAFS sont plus petites que les distances déduites de la caractérisation par diffraction de rayons X. Ce résultat n'est pas surprenant dans la mesure où le signal EXAFS, enregistré au seuil du Fe, n'est sensible qu'à l'environnement local des atomes de fer, alors que le paramètre mesuré par diffraction de rayons X résulte d'une valeur moyenne de toutes les distances Fe-Fe, Fe-Pd et Pd-Pd ; les distances Pd-Pd qui sont les plus grandes contribuent à la mesure par diffraction de rayons X mais pas à la mesure EXAFS.

Les mesures EXAFS révèlent que les distances Fe-Fe sont plus petites que les distances Fe-Pd. Ceci s'explique par le fait que le volume atomique du palladium est plus grand que celui du fer (le rayon covalent du palladium (resp. du fer) est égal à 1.28 Å (resp. 1.17 Å)). De plus, la différence entre les distances Fe-Fe et les distances Fe-Pd dans le plan est plus petite que hors du plan, ce qui montre la bonne épitaxie de l'alliage dans le plan de la couche mince. Nous remarquons que les distances Fe-Fe (resp Fe-Pd) dans le plan sont plus grandes que hors du plan, ce qui confirme la tétragonalité de la structure cristalline : l'alliage est épitaxié en tension sur la couche tampon de palladium.

- Facteurs de Debye-Waller

Les facteurs de Debye Waller sont plus petits pour le palladium que pour le fer. Chaque atome Pd entouré par des atomes Fe subit un plus petit déplacement qu'un atome Fe en raison de son plus grand rayon atomique et de son poids plus important.

- Nombres de coordination

Les nombres de coordination (Table II.6) qui résultent de l'analyse du signal EXAFS permettent de calculer les probabilités de trouver un atome Fe ou Pd en premier voisin de l'atome Fe central (Table II.7). L'incertitude sur ces probabilités est évaluée à 10%. Ces probabilités rendent compte de l'ordre à courte distance directionnel (OCDD).

	probabilités de 1 ^{iers} voisins : EXAFS (OCDD)			
	dans le plan		hors du plan	
	P _{plan} ^{Fe/Fe}	P _{plan} ^{Pd/Fe}	P _{hors} ^{Fe/Fe}	P _{hors} ^{Pd/Fe}
C-TA	0.71	0.29	0.69	0.31
C-TA/R-420	0.73	0.27	0.60	0.40
C/C-TEMPS	0.87	0.13	0.38	0.62
C/C-RHEED	0.82	0.18	0.39	0.61
C-350	1.00	0.00	0.31	0.69

Table II.7 : Probabilités de trouver un atome Fe (resp. Pd) en premier voisin d'un atome central de Fe dans le plan (001) et hors du plan (le long des directions de type $\langle 110 \rangle$), calculées à partir des résultats des mesures EXAFS. Ces probabilités sont données avec une précision de $\pm 10\%$.

3) Spectroscopie EXAFS : résumé

Les mesures de spectroscopie EXAFS ont permis de sonder l'ordre local directionnel dans les couches minces d'alliage FePd. Nous avons montré que tous les échantillons présentent une tendance à l'homocoordination. Les échantillons élaborés par codéposition à température ambiante, éventuellement suivie par une procédure de recuit, ne présentent pas d'ordre à courte distance directionnel ; les échantillons élaborés par dépôt alterné de couches atomiques se caractérisent par une anisotropie de l'ordre local assez prononcée ; l'élaboration par codéposition à 350°C a permis d'obtenir un degré d'ordre à courte distance directionnel très élevé.

D - Ordre à Longue Distance (OLD) et Ordre à Courte Distance Directionnel (OCDD) : Discussion

A la suite des expériences de diffraction de rayons X et de spectroscopie EXAFS, nous disposons d'une description de l'état d'ordre dans les couches minces, selon deux points de vue : l'ordre à longue distance et l'ordre à courte distance. Ce chapitre constitue la synthèse de ces résultats. Nous montrons dans une première partie que les résultats mesurés indépendamment sont compatibles, et également complémentaires. La deuxième partie est consacrée à l'interprétation de l'état d'ordre obtenu en fonction de la procédure d'élaboration.

1) Compatibilité et complémentarité de l'OLD et de l'OCDD

Notre objectif est de comparer les paramètres d'ordre à longue distance (OLD) et d'ordre à courte distance directionnel (OCDD) obtenus respectivement par diffraction de rayons X et par spectroscopie EXAFS. Nous rappelons que le paramètre OLD, noté S , est défini comme étant la différence de concentration en atomes Fe sur les deux sous-réseaux de la phase ordonnée de type $L1_0$. En supposant une distribution aléatoire de ces atomes Fe sur les sous-réseaux, nous pouvons calculer la probabilité de trouver un atome Fe ou Pd comme premier voisin d'un atome central Fe, dans le plan ou hors du plan de la couche mince, à partir des équations suivantes.

Nous définissons respectivement par I et II les sous-réseaux de fer et palladium de la structure ordonnée. Les probabilités de points pour le fer, c'est-à-dire les probabilités P_I^{Fe} et P_{II}^{Fe} de trouver un atome Fe sur les sous-réseaux I et II, s'écrivent :

$$P_I^{Fe} = C_{Fe} + \frac{S}{2} \quad \text{II.16}$$

$$P_{II}^{Fe} = C_{Fe} - \frac{S}{2} \quad \text{II.17}$$

où C_{Fe} est la concentration atomique en fer ($C_{Fe}=0.5$ dans notre cas).

En supposant un ordre à longue distance partiel avec une distribution aléatoire des atomes Fe et Pd sur les sous-réseaux I et II, les probabilités de paires $P_{plan}^{Fe/Fe}$ et $P_{hors}^{Fe/Fe}$, c'est-à-dire les probabilités de trouver, dans le plan de la couche ou hors du plan, un atome Fe voisin d'un atome Fe central, sont données par les probabilités de points P_I^{Fe} et P_{II}^{Fe} :

$$P_{plan}^{Fe/Fe} = \frac{1}{2} (P_I^{Fe} P_I^{Fe} + P_{II}^{Fe} P_{II}^{Fe}) / C_{Fe} \quad \text{II.18}$$

$$P_{hors}^{Fe/Fe} = \frac{1}{2} (P_I^{Fe} P_{II}^{Fe} + P_{II}^{Fe} P_I^{Fe}) / C_{Fe} \quad \text{II.19}$$

Les probabilités de paires pour les atomes Pd, c'est-à-dire les probabilités $P_{plan}^{Pd/Fe}$ et $P_{hors}^{Pd/Fe}$ de trouver, dans le plan de la couche ou hors du plan, un atome Pd voisin d'un atome Fe central, s'obtiennent à partir des relations :

$$P_{plan}^{Pd/Fe} = 1 - P_{plan}^{Fe/Fe} \quad \text{II.20}$$

$$P_{hors}^{Pd/Fe} = 1 - P_{hors}^{Fe/Fe} \quad \text{II.21}$$

Nous avons reportés les résultats de ce calcul dans le tableau suivant (Table II.8).

	S diffraction RX	probabilité de 1 ^{iers} voisins : diffraction RX (OLD) + distribution aléatoire			
		dans le plan		hors du plan	
		P _{plan} ^{Fe/Fe}	P _{plan} ^{Pd/Fe}	P _{hors} ^{Fe/Fe}	P _{hors} ^{Pd/Fe}
C-TA	0.00	0.50	0.50	0.50	0.50
C-TA/R-420	0.00	0.50	0.50	0.50	0.50
C/C-TEMPS	0.08	0.50	0.50	0.50	0.50
C/C-RHEED	0.23	0.54	0.46	0.46	0.54
C-350	0.79	0.82	0.18	0.18	0.82

Table II.8 : Probabilités de trouver un atome Fe (resp. Pd) en premier voisin d'un atome central Fe dans le plan (001) ou hors du plan (le long des directions de type <110>), calculées à partir du paramètre d'ordre à longue distance (S) mesuré par diffraction des rayons X (Table II.2) et en supposant une distribution aléatoire des atomes Fe et Pd sur les deux sous-réseaux de la structure L1₀.

Ces probabilités, calculées à partir de l'OLD et en supposant une distribution aléatoire des atomes sur les deux sous-réseaux de la structure ordonnée, diffèrent de celles mesurées par spectroscopie EXAFS (Table II.7). Nous pouvons donc conclure qu'un ordre à courte distance s'ajoute à l'ordre à longue distance. Avant d'interpréter les résultats, il est important de montrer que les mesures de diffraction de rayons X et celles de spectroscopie EXAFS sont compatibles, c'est-à-dire que pour chaque échantillon, il est possible d'imaginer une configuration atomique satisfaisant à la fois le paramètre OLD et les paramètres OCDD mesurés. Pour cela, un programme de simulation, basé sur une méthode de Monte Carlo inverse, a été développé. Il permet de construire des configurations atomiques étant donnés le paramètre OLD et les paramètres de Warren Cowley anisotropes représentant l'OCDD.

Par analogie avec les paramètres de Warren Cowley isotropes, nous définissons les paramètres de Warren Cowley anisotropes rendant compte de l'OCDD. Nous distinguons les paramètres dans le plan et hors du plan de la couche mince, pour chaque sphère L de proches voisins :

$$\alpha_{\text{plan}}(L) = 1 - P_{\text{plan}}^{B/A}(L)/C_B \quad \text{II.22}$$

$$\text{et } \alpha_{\text{hors}}(L) = 1 - P_{\text{hors}}^{B/A}(L)/C_B \quad \text{II.23}$$

où $P_{\text{plan}}^{B/A}(L)$ (resp $P_{\text{hors}}^{B/A}(L)$) est la probabilité que l'atome central A ait un atome B en L^{ème} voisin dans le plan de la couche (resp hors du plan), C_B est la concentration en atomes B.

Pour illustrer la signification des paramètres de Warren Cowley anisotropes, nous exposons quelques exemples :

- Si $P_{\text{plan}}^{B/A}(L) = P_{\text{hors}}^{B/A}(L) = C_B$, alors $\alpha_{\text{plan}}(L) = \alpha_{\text{hors}}(L) = 0$: le système est désordonné.
- Si $P_{\text{plan}}^{B/A}(L) < C_B$, alors $\alpha_{\text{plan}}(L) > 0$: l'homocoordination est favorisée dans le plan.

- Pour la phase $L1_0$ idéale, parfaitement ordonnée à la composition équiatomique, $P_{\text{plan}}^{B/A}(L) = 0$ et $P_{\text{hors}}^{B/A}(L) = 1$, alors $\alpha_{\text{plan}}(L) = 1$ et $\alpha_{\text{hors}}(L) = -1$.

Dans les alliages étudiés, nous avons considéré la sphère des premiers voisins, c'est-à-dire $L=1$, avec l'atome central $A=\text{Fe}$ et les atomes voisins $B=\text{Fe}$ ou Pd . Le programme permet de choisir la taille de la configuration à construire (ici : $7 \times 7 \times 7$ cellules unités), la concentration (ici : 0.5) et les paramètres OLD et OCDD.

Le programme a permis de trouver, pour les cinq échantillons considérés, une configuration satisfaisant les paramètres OLD et OCDD mesurés expérimentalement, dans la marge d'erreur expérimentale (comparer les tables II.2, II.7 et II.9). Ainsi, nous avons montré que les résultats obtenus par diffraction de rayons X et par spectroscopie EXAFS sont compatibles et complémentaires. Il est nécessaire de connaître à la fois le paramètre

	SIMULATION				
	S	Probabilités de 1 ^{iers} voisins			
		dans le plan		hors du plan	
		$P_{\text{plan}}^{\text{Fe/Fe}}$	$P_{\text{plan}}^{\text{Pd/Fe}}$	$P_{\text{hors}}^{\text{Fe/Fe}}$	$P_{\text{hors}}^{\text{Pd/Fe}}$
C-TA	0.00	0.71	0.29	0.69	0.31
C-TA/R-420	0.00	0.72	0.28	0.66	0.33
C/C-TEMPS	0.10	0.88	0.12	0.38	0.62
C/C-RHEED	0.20	0.82	0.18	0.39	0.61
C-350	0.70	0.94	0.06	0.30	0.70

Table II.9 : Paramètres correspondant aux configurations élaborées par le programme de simulation : pour les cinq types d'échantillons, ils sont égaux aux résultats expérimentaux, aux erreurs de mesures près.

OLD et les paramètres OCDD pour décrire correctement l'ordre chimique dans les échantillons.

Pour illustrer la superposition d'un ordre local directionnel sur l'ordre à longue distance, la figure II.22 représente deux configurations pour l'échantillon codéposé à 350°C . La configuration (a) satisfait le paramètre OLD mesuré par diffraction de rayons X et elle a été construite en supposant une distribution aléatoire des atomes Fe et Pd sur les sous-réseaux correspondants (les paramètres exacts de la configuration dessinée sont : $S = 0.79$, $P_{\text{plan}}^{\text{Pd/Fe}} = 0.18$ et $P_{\text{hors}}^{\text{Pd/Fe}} = 0.82$). La configuration (b) satisfait à la fois le paramètre OLD mesuré par diffraction de rayons X et les paramètres OCDD mesurés par spectroscopie EXAFS (les paramètres exacts de la configuration dessinée sont : $S = 0.70$, $P_{\text{plan}}^{\text{Pd/Fe}} = 0.06$ et $P_{\text{hors}}^{\text{Pd/Fe}} = 0.70$).

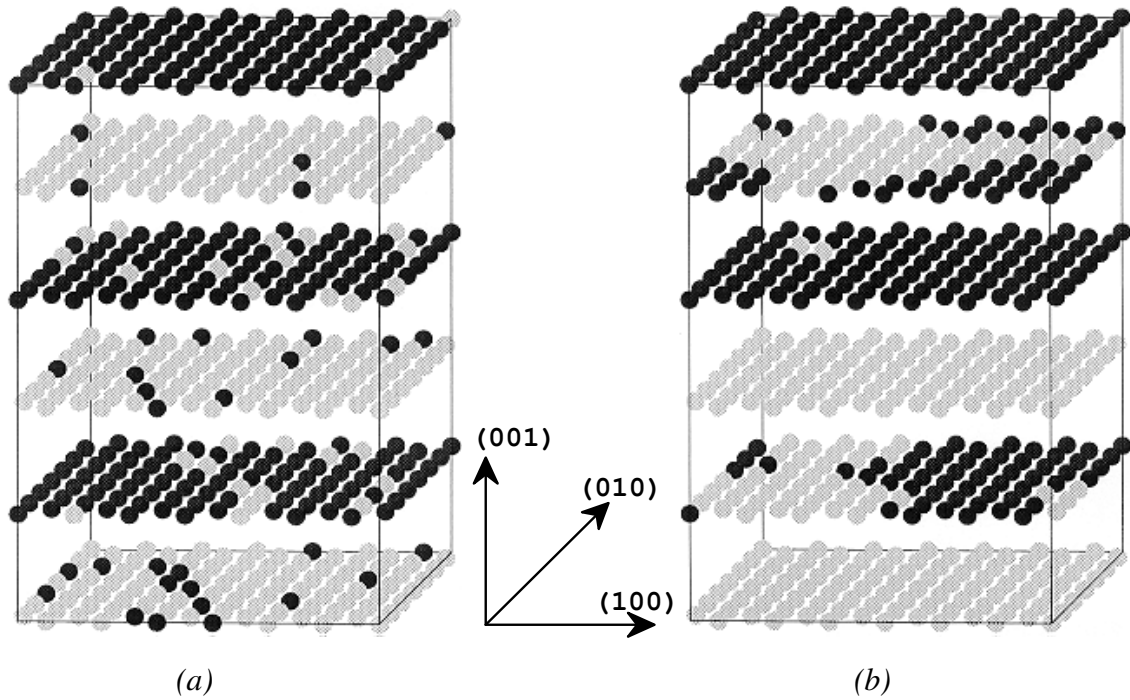


Fig. II.22 : Configurations atomiques obtenues par le programme de simulation pour l'échantillon C-350 (a) en tenant compte du paramètre OLD mesuré par diffraction de rayons X et en supposant une distribution aléatoire des atomes Fe et Pd sur les deux sous-réseaux (b) en tenant compte du paramètre OLD mesuré par diffraction de rayons X et des paramètres OCDD mesurés par EXAFS. Les configurations atomiques représentées correspondent à $(7 \times 7 \times 2.5)$ cellules unités.

2) Interprétation de l'état d'ordre (OLD et OCDD) obtenu par les différentes procédures d'élaboration

La figure II.23 permet la comparaison entre les résultats des mesures EXAFS, représentant l'OCDD, et ceux de diffraction de rayons X, représentant l'OLD. A partir de cette figure, nous pouvons interpréter l'ordre local en terme de tendance à l'homocoordination et d'anisotropie de l'ordre chimique.

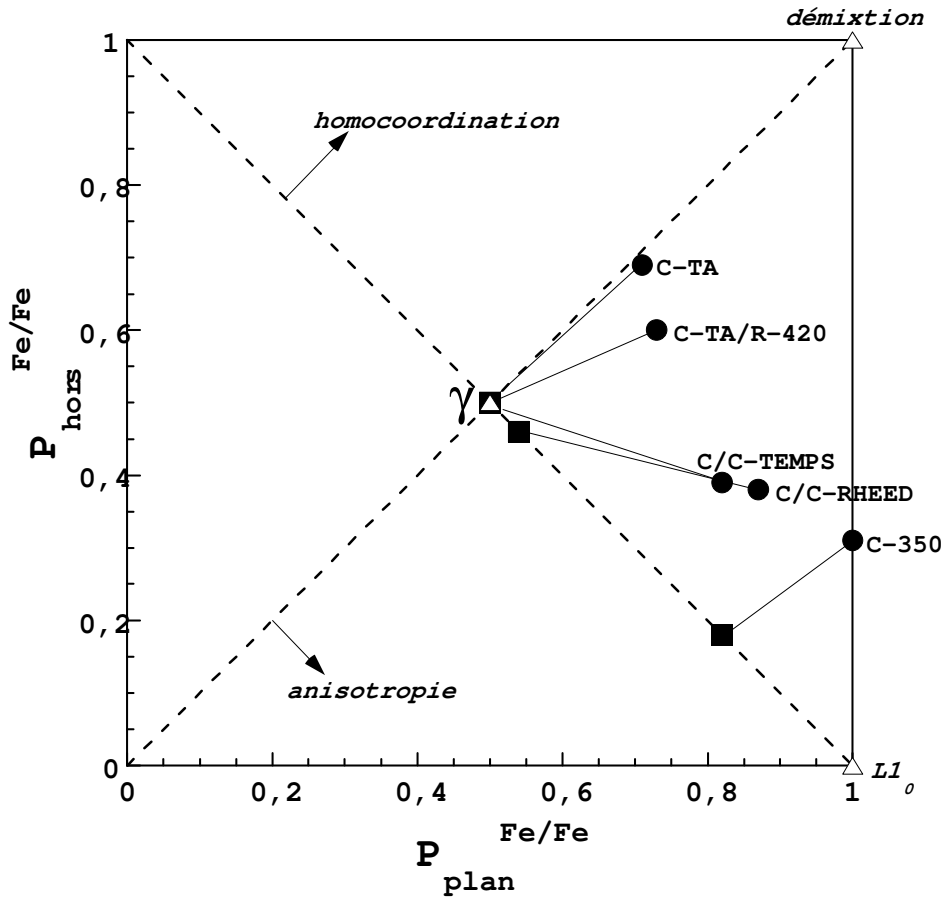


Figure II.23 : Probabilité $P_{\text{hors}}^{\text{Fe/Fe}}$ de trouver un atome Fe en premier voisin d'un atome central Fe dans une direction hors du plan des couches minces en fonction de la probabilité $P_{\text{plan}}^{\text{Fe/Fe}}$ de trouver un atome Fe en premier voisin d'un atome central Fe dans le plan (001). Les disques représentent les résultats des mesures EXAFS (Table II.7) ; les carrés représentent les résultats de diffraction de rayons X (Table II.8) ; les triangles représentent la phase ordonnée $L1_0$, la phase désordonnée γ et la démixtion. La droite en trait pointillé, le long de laquelle $(P_{\text{hors}}^{\text{Fe/Fe}} + P_{\text{plan}}^{\text{Fe/Fe}}) = 1$, représente la frontière entre la tendance à l'homocoordination et la tendance à l'hétérocoordination ; la droite en trait pointillé, le long de laquelle $P_{\text{hors}}^{\text{Fe/Fe}} = P_{\text{plan}}^{\text{Fe/Fe}}$, représente la limite d'une anisotropie de l'ordre local.

- Tendance à l'homocoordination

Les résultats de l'expérience EXAFS révèlent une tendance à l'homocoordination, équivalente pour tous les échantillons :

$$P_{\text{plan}}^{\text{Fe/Fe}} + P_{\text{hors}}^{\text{Fe/Fe}} \approx 1.3 \quad \text{II.24}$$

Ce résultat est surprenant puisque la structure d'équilibre, dans l'alliage FePd massif, est la phase ordonnée de type $L1_0$ pour laquelle l'hétérocoordination est majoritaire (dans la structure $L1_0$ parfaitement ordonnée, un atome Fe aura 4 premiers voisins Fe sur un total de 12 premiers voisins). La tendance à l'homocoordination observée ici peut résulter du processus de croissance, et d'un équilibre de surface différent de celui du volume.

- Anisotropie de l'ordre chimique

Pour les échantillons élaborés par codéposition, la différence entre l'OLD et l'OCDD correspond uniquement à la tendance à l'homocoordination. Les échantillons C-TA et C-TA/R-420 apparaissent désordonnés à longue distance et ne présentent pas d'ordre à courte distance directionnel. Nous rappelons que le recuit à 420°C s'était accompagné d'un processus de diffusion de surface ; les mesures EXAFS ne révèlent pas la présence d'une anisotropie de l'ordre chimique résultant d'une éventuelle diffusion en volume. L'échantillon C-350 se caractérise par un paramètre OLD et des paramètres OCDD élevés. Nous rappelons que les oscillations RHEED de double période suggéraient que la mise en ordre chimique se produisait en surface, lors de la croissance. De plus, la codéposition à 350°C conduit à un degré d'ordre élevé, alors que le recuit à 420°C, d'un échantillon déposé à température ambiante, ne mène pas à l'ordre $L1_0$. Cette comparaison montre que le mécanisme de mise en ordre est lié au processus de croissance à 350°C.

Pour les échantillons élaborés en dépôt alterné, la différence entre l'OLD et l'OCDD correspond à la tendance à l'homocoordination à laquelle s'ajoute une anisotropie locale de l'ordre chimique. Ainsi, les échantillons C/C-TEMPS et C/C-RHEED présentent un OCDD très prononcé malgré un OLD faible. La différence importante entre les paramètres OLD et OCDD pour ces échantillons élaborés par dépôt alterné de couches atomiques peut s'expliquer par les conditions de dépôt. L'apport des éléments Fe et Pd étant alternatif, il en résulte un ordre local directionnel assez prononcé. Cependant, un déphasage entre les ouvertures des évaporateurs et la complétion des couches atomiques conduit à la présence de marches monoatomiques en surface, à chaque changement d'élément Fe ou Pd déposé. De telles conditions de dépôt sont susceptibles de conduire à la formation d'un grand nombre de domaines antiphasés. Si la longueur de cohérence du rayonnement X utilisé pour évaluer le degré d'ordre à longue distance est supérieure à la taille des domaines antiphasés, alors l'intensité diffractée à la position du pic de surstructure correspond à une addition d'ondes en opposition de phase et elle est négligeable : il en résulte un faible paramètre OLD.

3) OLD et OCDD : résumé

Dans cette partie, nous avons montré que les résultats obtenus par diffraction de rayons X et par spectroscopie EXAFS sont compatibles et complémentaires. Il est nécessaire de connaître à la fois le paramètre OLD et les paramètres OCDD pour décrire correctement l'ordre chimique dans les échantillons.

Le tableau II.10 présente l'état d'ordre chimique obtenu par les différentes procédures d'élaboration des alliges FePd.

Procédure d'élaboration	Ordre à Longue Distance (OLD)	Ordre à courte distance directionnel (OCDD)
C-TA	0	0
C-TA/R-420	0	0
C/C-TEMPS	0	+
C/C-RHEED	+	+
C-350	++	++

Table II.10 : Ordre à longue distance et ordre à courte distance directionnel obtenu par les différentes procédures d'élaboration.

CHAPITRE II : CONCLUSION

La synthèse des résultats de diffraction de rayons X et d'EXAFS nous a permis de décrire la mise en ordre chimique dans les couches minces d'alliage FePd. Nous avons vu que les différentes procédures d'élaboration ont abouti à différentes combinaisons des degrés d'ordre à longue et courte distance. Par exemple, les deux échantillons élaborés en dépôt alterné couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt ou les oscillations RHEED, ont les mêmes paramètres OCDD mais un paramètre OLD différent. Il va donc être intéressant de comparer leurs propriétés magnétiques, et notamment l'anisotropie uniaxiale, pour comprendre l'influence des deux types d'ordre chimique. Le chapitre III de ce mémoire est consacré à l'étude des propriétés magnétiques des échantillons dont nous venons de caractériser la structure.

La procédure la plus efficace pour obtenir la mise en ordre avec l'axe c de la structure ordonnée suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche mince est la codéposition de l'alliage en température. Le dépôt alterné en couche par couche s'avère délicat, ce qui peut paraître étonnant dans ce type de système où la phase ordonnée est la phase stable thermodynamiquement. Le contrôle du temps de dépôt des couches atomiques par les oscillations RHEED permet d'améliorer sensiblement le degré d'ordre à longue distance dans les échantillons élaborés en couche par couche.

Nous n'avons pas observé de différence structurale entre les échantillons C-TA et C-TA/R-420. Une étude plus systématique de l'influence du recuit doit être entreprise. Il s'agit de déterminer les conditions optimales pour obtenir la mise en ordre, sans provoquer la diffusion dans la couche tampon Pd. Dans le cas d'une mise en ordre induite par la procédure de recuit, il faudra confirmer que celle-ci ne mène qu'à un seul variant : celui avec l'axe c de la structure ordonnée perpendiculaire au plan de la couche mince.

CHAPITRE III

Caractérisation magnétique

Ce chapitre est consacré à la caractérisation magnétique des couches minces d'alliage FePd. Nous présentons tout d'abord les modèles qui permettent de rendre compte des processus d'aimantation dans les couches minces à anisotropie uniaxiale. Nous passons ainsi en revue les différentes situations qui peuvent se présenter en fonction de l'amplitude de l'anisotropie et de l'épaisseur des couches minces. Nous pouvons ensuite interpréter les mesures d'aimantation puis les images de domaines magnétiques, dans le cadre de ces modèles. Cette analyse permet d'estimer quantitativement certains paramètres physiques du matériau : la constante d'anisotropie uniaxiale, l'énergie de paroi entre domaines magnétiques. Nous présentons enfin les résultats de spectroscopie Mössbauer et de spectroscopie Kerr polaire.

Nous avons choisi d'utiliser, tout au long de ce mémoire, le système d'unités **c.g.s.** pour l'expression des grandeurs magnétiques. Ceci permet en effet une simplification d'écriture des équations. De plus, ce système est le plus couramment utilisé dans la littérature. Nous présentons, dans l'annexe 2, des tables de conversion vers le système d'unités international S.I.

A - Configuration magnétique des couches minces à anisotropie perpendiculaire : modélisation analytique

De nombreuses publications traitent des processus d'aimantation dans les couches minces à anisotropie perpendiculaire. Nous nous intéressons aux modèles qui rendent compte des phénomènes à partir d'une minimisation de l'énergie totale du système considéré. La principale caractéristique dont ces modèles cherchent à rendre compte est la configuration en domaines magnétiques, et notamment la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince. L'évolution des courbes d'aimantation en champ perpendiculaire peut être traitée simultanément. Enfin, certains modèles permettent de calculer des fonctions $\theta(x)$ qui représentent les profils d'aimantation (θ est l'angle de l'aimantation par rapport au plan de la couche mince). Nous nous proposons ici de passer en revue les différents modèles que nous avons utilisés pour l'analyse des processus d'aimantation dans les couches minces d'alliage FePd.

Dans une première partie, nous précisons quelle est la direction de facile aimantation dans une couche mince. Nous verrons que celle-ci dépend du signe de l'anisotropie uniaxiale effective. Ensuite, nous cherchons à rendre compte de la configuration magnétique en champ nul et des courbes d'aimantation. Pour cela, nous évaluons l'énergie totale du système qui est la somme de l'énergie de paroi entre domaines magnétiques e_w , l'énergie d'anisotropie uniaxiale e_K , l'énergie magnétostatique e_d et l'énergie du champ extérieur e_H . Comme une solution exacte de la variation de l'énergie libre est trop compliquée, le calcul est effectué en deux étapes. Dans un premier temps, l'énergie magnétostatique est négligée et nous pouvons calculer, dans le cas général d'un matériau à anisotropie uniaxiale, une famille de fonctions donnant les profils

d'aimantation ainsi que l'énergie de paroi. Dans un second temps, nous introduisons l'énergie magnétostatique pour le calcul de l'énergie totale. Différentes approximations peuvent alors être faites sur le profil de l'aimantation, suivant que l'anisotropie uniaxiale est forte ou faible, aussi nous distinguons ces deux cas. Notons que dans tous ces modèles, la direction de l'aimantation est uniforme suivant la direction z , perpendiculaire à la couche mince. Nous consacrons une dernière partie au problème des domaines de fermeture.

1) Direction de l'aimantation dans une couche mince et évaluation de la constante d'anisotropie uniaxiale effective

a) Direction de facile aimantation dans une couche mince

Nous nous intéressons à la direction de l'aimantation dans une couche mince magnétique à anisotropie uniaxiale. Le matériau est caractérisé par son aimantation à saturation M_s et par sa constante d'anisotropie uniaxiale K_u . La direction de l'axe de facile aimantation est déterminée par le signe de la constante d'anisotropie uniaxiale effective K_{eff} : $K_{eff} = K_u - 2\pi M_s^2$.

- Dans le cas des fortes anisotropies uniaxiales telles que $K_{eff} > 0$, l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince. Le vecteur aimantation est dirigé suivant la normale au plan, et l'on observe en général une configuration en "domaines magnétiques" qui permet au système d'abaisser son énergie magnétostatique : la couche mince est divisée en zones dans lesquelles le vecteur aimantation pointe vers l'une ou l'autre des faces. La taille latérale de ces domaines magnétiques dépend de l'épaisseur de la couche mince.

- Dans le cas des faibles anisotropies uniaxiales telles que $K_{eff} < 0$, l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche mince. Pour les faibles épaisseurs, la direction de l'aimantation est dans le plan de la couche mince ; au dessus d'une épaisseur critique h_c , il se développe une structure en "rubans", c'est-à-dire que l'aimantation pointe alternativement vers l'une ou l'autre des faces de la couche mince. Cette structure est en fait très similaire à la structure en domaines magnétiques d'une couche mince à aimantation perpendiculaire, les parois entre domaines étant plus étendues et ne se distinguant plus des domaines, lorsque l'anisotropie est plus faible.

b) Détermination expérimentale de la constante d'anisotropie effective

Un raisonnement thermodynamique simple montre que la valeur de K_{eff} peut être évaluée à partir des courbes d'aimantation mesurées dans un champ magnétique appliqué dans le plan de la couche mince et perpendiculairement à celui-ci [CHI 64]. Considérons le travail nécessaire pour aimanter la couche mince. Pour augmenter l'aimantation de M à $M + \delta M$ sous l'action d'un champ magnétique H parallèle à M , le travail nécessaire par unité de volume de matériau est $\delta W = H \times \delta M$. Donc le travail nécessaire pour aimanter un échantillon de l'état désaimanté ($M=0$) à la saturation ($M=M_s$) est égal à :

$W = \int_{M=0}^{M=M_s} H \times \delta M$. Ce travail est égal à l'aire entre l'axe des ordonnées, la ligne $M=M_s$ et la courbe d'aimantation (Fig. III.1).

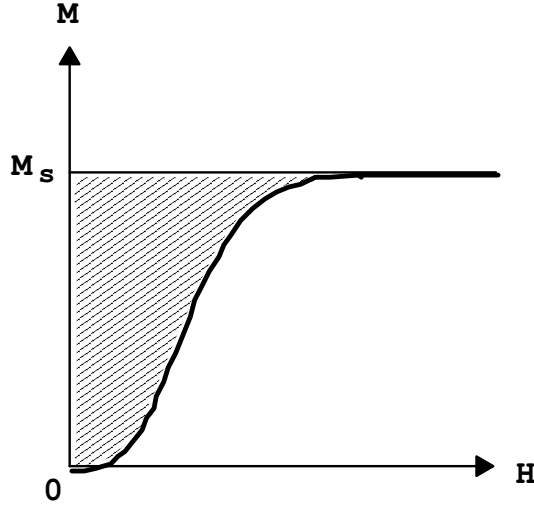


Fig. III.1 : L'aire hachurée entre l'axe des ordonnées, la ligne $M=M_s$ et la courbe d'aimantation représente le travail requis pour saturer l'échantillon.

Considérons maintenant la différence d'énergie ΔE entre les états saturés parallèle (noté \rightarrow) et perpendiculaire (noté \uparrow). D'une part, $\Delta E = K_u - 2\pi M_s^2 = K_{eff}$ et d'autre part, $\Delta E = \int_{\uparrow}^{\rightarrow} \delta W = \int_{M=0}^{\rightarrow} \delta W - \int_{M=0}^{\uparrow} \delta W$. La constante d'anisotropie effective est ainsi donnée par la différence d'aire au dessus des courbes d'aimantation obtenues en champ parallèle et perpendiculaire.

2) Calcul des profils d'aimantation en champ nul et expression de l'énergie de paroi

Nous présentons ici l'approche proposée par Kaczer et al. [KAC 63] pour déterminer l'énergie de paroi, en champ nul. Nous considérons une paroi entre domaines magnétiques, alignée suivant la direction y dans le plan de la couche mince (Fig. III.2). L'aimantation fait un angle θ avec le plan de la couche mince. Au centre des deux domaines adjacents, l'angle de l'aimantation est respectivement égal à $+\theta_0$ et $-\theta_0$.

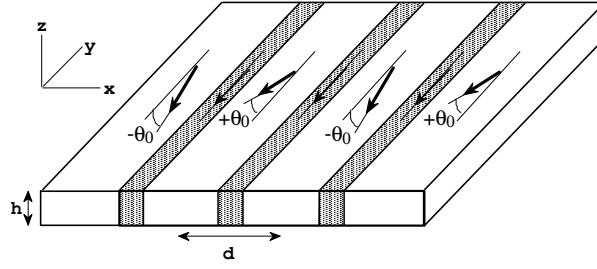


Fig. III.2 : Schéma de la configuration en domaines magnétiques envisagée par Kaczer et al. [KAC 63]

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'énergie magnétostatique est négligée dans un premier temps et l'énergie libre du système s'écrit :

$$E = \int_0^d \left(A \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 + K_u \times \cos^2 \theta \right) dx \quad \text{III.1}$$

où A est la constante d'échange caractérisant le matériau et $2d$ est la période de la structure en domaines.

Par un calcul variationnel, on peut montrer que le profil de l'aimantation $\theta(x)$ est solution

$$\text{de l'équation différentielle : } A \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 = K_u (\cos^2 \theta - \cos^2 \theta_0). \quad \text{III.2}$$

a) Profils d'aimantation en champ nul

Pour proposer un profil d'aimantation, nous résolvons l'équation différentielle qui donne la fonction réciproque de $\theta(x)$:

$$x(\theta) = \sqrt{\frac{A}{K_u}} \int_0^\theta \frac{dt}{\sqrt{\cos^2 t - \cos^2 \theta_0}}. \quad \text{III.3}$$

Ainsi, en champ nul, pour des domaines magnétiques alignés suivant la direction y du plan de la couche mince, le profil de l'aimantation est donné par la relation suivante :

$$\sin \theta(x) = \sin \theta_0 \times \text{sn} \left(\frac{x}{\delta} \middle| \sin \theta_0 \right) \quad \text{III.4}$$

où $\delta = \sqrt{\frac{A}{K_u}}$ est une longueur caractéristique de l'épaisseur des parois, $\text{sn}(u|k)$ est la

fonction elliptique sinus-amplitude de Jacobi (voir annexe 4).

La période de la configuration magnétique décrite par cette famille de fonctions est égale à : $2d = 4\delta K(\sin \theta_0)$ III.5

où $K(k)$ est l'intégrale elliptique complète du premier type (voir annexe 4).

Cette approche, proposée par Kaczer et al. [KAC 63], permet donc de définir une famille de fonctions $\theta(x)$ qui sont solutions de la minimisation de l'énergie libre. Ces fonctions sont définies par les deux paramètres θ_0 et δ . La figure III.3 représente trois de ces fonctions pour différentes valeurs des paramètres. Les paramètres ont été choisis pour que les fonctions aient la même période : $2d = 4\delta K(\sin \theta_0) = 1$. Pour θ_0 grand, les fonctions se rapprochent de la fonction créneau : ce type de fonctions représente le cas où la taille des parois entre domaines est très petite devant la taille des domaines (cas des

fortes anisotropies). Pour θ_0 petit, les fonctions sont proches de la fonction sinus : ce type de fonctions représente le cas où les parois entre domaines sont très étendues (cas des faibles anisotropies).

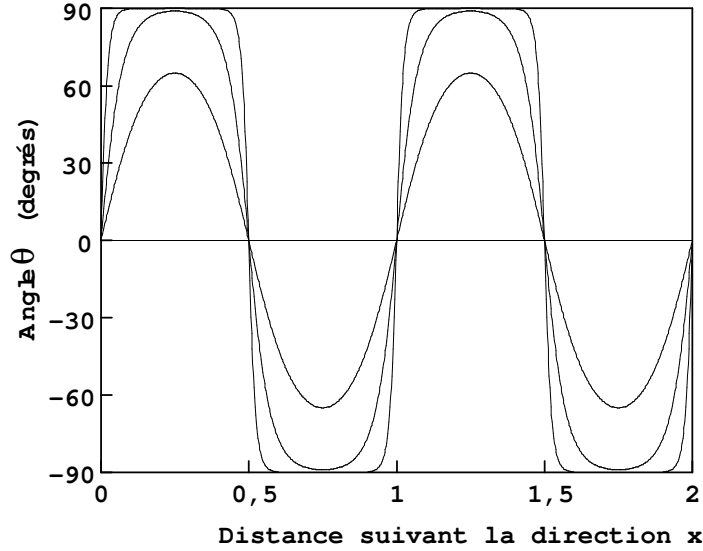


Fig. III.3 : Trois exemples de fonctions $\theta(x)$ définies par l'expression

$$\sin \theta(x) = \sin \theta_0 \times \operatorname{sn}\left(\frac{x}{\delta} | \sin \theta_0\right)$$

(les paramètres θ_0 et δ ont été choisis pour que les fonctions aient la même période : $2d = 4\delta K(\sin \theta_0) = 1$)

b) Energie de paroi entre domaines magnétiques

L'énergie de paroi entre domaines magnétiques contient l'énergie d'échange et la différence d'énergie d'anisotropie entre la structure en domaines séparés par des parois et la structure en domaines où l'épaisseur des parois est nulle (fonction créneau) :

$$\sigma = \int_0^d \left(A \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 + K_u \times \cos^2 \theta \right) dx - \int_0^d K_u \times \cos^2 \theta_0 dx \quad \text{III.6}$$

Nous pouvons calculer l'énergie de paroi en substituant la formule III.2 et nous obtenons :

$$\sigma = 4\sqrt{AK_u} \int_0^{\theta_0} \sqrt{\cos^2 \theta - \cos^2 \theta_0} d\theta \quad \text{III.7}$$

$$\text{qui peut s'écrire [KAC 63] : } \sigma = \sigma_w \left[E(\sin \theta_0) - \cos^2 \theta_0 \times K(\sin \theta_0) \right] \quad \text{III.8}$$

où $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u}$ est la densité d'énergie d'une paroi à 180° ($\theta_0 = \pi/2$) ; $K(k)$ et $E(k)$ sont les intégrales elliptiques complètes du premier et du second type.

3) Expression de l'énergie totale dans le cas des matériaux à forte anisotropie uniaxiale ($K_u > 2\pi M_s^2$)

Dans le cas d'une forte anisotropie uniaxiale, c'est-à-dire $K_u > 2\pi M_s^2$, en champ nul ou avec un champ extérieur perpendiculaire au plan de la couche mince, nous pouvons faire l'approximation que la taille des parois est négligeable devant la taille des domaines et que l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince dans les domaines. C'est l'approximation proposée par Kooy et Enz [KOO 60], qui revient à considérer que la distribution de charges magnétostatiques en surface a la forme d'une fonction créneau $\pm M_s$. Les parois sont des parois de Bloch à 180° et la densité d'énergie d'une paroi est égale à $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u}$.

Nous considérons donc une couche mince d'épaisseur h dans laquelle la direction de l'aimantation M est perpendiculaire au plan de la couche (Fig. III.4). La période des

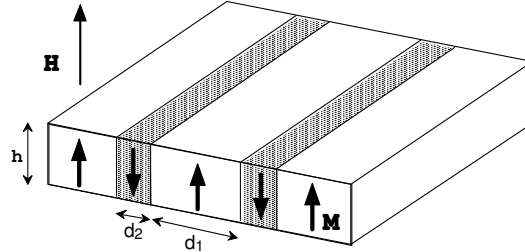


Fig. III.4 : Configuration en domaines magnétiques dans le cas des fortes anisotropies (modèle de Kooy et Enz [KOO 60]).

domaines magnétiques est $2d$. Le champ extérieur H est appliqué perpendiculairement au plan de la couche mince. La taille des domaines magnétiques dont l'aimantation est dirigée suivant la direction de H (resp. la direction opposée à H) est d_1 (resp. d_2).

Dans ce cas, l'énergie totale e_t du système est la somme de l'énergie apportée par le champ extérieur e_H , l'énergie de paroi entre domaines magnétiques e_w , l'énergie magnétocristalline e_K et l'énergie démagnétisante e_d de la configuration en domaines magnétiques : $e_t = e_H + e_w + e_K + e_d$. Nous donnons ci-après les expressions des énergies dans le système d'unités réduites présenté dans l'annexe 2 (c'est-à-dire les énergies divisées par $2\pi M_s^2$, le champ magnétique divisé par $4\pi M_s$ et l'aimantation divisée par M_s).

- L'énergie apportée par le champ appliqué est égale à : $e_H = -2H_r \cdot m$ III.9

avec $m = \frac{M}{M_s} = \frac{d_1 - d_2}{d_1 + d_2}$.

- L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline par unité de volume est nulle, puisque nous supposons que la taille des parois est négligeable devant la taille des domaines et que l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince dans les domaines.

- La densité d'énergie d'une paroi (par unité de surface de paroi) est constante et égale à $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u}$ donc la densité d'énergie de paroi (par unité de volume) s'écrit :

$$e_w = \frac{2D_0\alpha}{h\sqrt{\mu}} \quad \text{III.10}$$

avec $D_0 = \frac{\sigma_w}{2\pi M_s^2}$ (longueur dipolaire), $\alpha = \frac{h\sqrt{\mu}}{(d_1 + d_2)}$ et $\mu = 1 + \frac{2\pi M_s^2}{K_u}$.

Nous avons inclus ici “ l’effet de μ ” initialement introduit par Shockley [SHO 48] qui rend compte de la présence de charges magnétostatiques de volume lorsque l’énergie d’anisotropie magnétocristalline K_u est à peine supérieure à l’énergie $2\pi M_s^2$.

- L’énergie démagnétisante de la configuration en domaines est obtenue en considérant la distribution de charges en surface ayant la forme d’une fonction créneau [KOO 60] :

$$e_d = m^2 + \frac{4\sqrt{\mu}}{\alpha\pi^3} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \sin^2\left[\frac{n\pi}{2}(1+m)\right] \times \frac{1}{n} \frac{2 \cdot \sinh(n\pi\alpha)}{\sinh(n\pi\alpha) + \sqrt{\mu} \cosh(n\pi\alpha)} \quad \text{III.11}$$

Dans le cas des grandes épaisseurs traité par Kooy et Enz [KOO 60], la fraction de fonctions trigonométriques hyperboliques peut être remplacée par le terme :

$$f_k = \frac{2}{1+\sqrt{\mu}} [1 - \exp(-2n\pi\alpha)]. \quad \text{III.12}$$

Nous montrons dans l’annexe 5 que l’approximation peut être améliorée en remplaçant la fraction de fonctions trigonométriques hyperboliques par le terme :

$$f_c = \frac{2}{1+\sqrt{\mu}} [1 - \exp(-2n\pi\alpha)] \times [1 + (r-1)\exp(-2n\pi\alpha)] \quad \text{III.13}$$

$$\text{avec } r = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{\sqrt{\mu}} \right).$$

Ce terme se rapproche asymptotiquement de l’expression exacte à la fois pour les petites et les grandes épaisseurs.

a) Taille des domaines en champ nul

En champ nul, la minimisation de l’énergie permet d’accéder à la taille d des domaines, qui varie en fonction de l’épaisseur h de la couche mince (Fig. III.5). Le sens de cette variation dépend du domaine d’épaisseurs considéré : pour les faibles épaisseurs, la taille des domaines décroît rapidement lorsque l’épaisseur augmente alors qu’aux fortes épaisseurs, la taille des domaines augmente lentement. Il existe ainsi une épaisseur intermédiaire pour laquelle la taille des domaines est minimale. Nous pouvons commenter qualitativement l’origine des deux régimes observés.

- Dans le domaine des fortes épaisseurs, l’augmentation de la taille des domaines avec l’épaisseur de la couche mince résulte du fait que l’énergie de paroi augmente avec l’épaisseur : minimiser l’énergie totale revient à diminuer le nombre de parois, ce qui se traduit par une plus grande taille de domaines.

- Dans le domaine des faibles épaisseurs, le comportement est différent car dans ce cas, le terme dominant est l’interaction magnétostatique entre les deux surfaces de la couche mince et cette interaction favorise les grandes tailles de domaines.

Selon le domaine d’épaisseurs considéré, différentes expressions approchées peuvent être utilisées pour rendre compte de la variation de la taille des domaines magnétiques en fonction de l’épaisseur.

- Dans le cas des faibles épaisseurs, nous montrons dans l’annexe 2 que le logarithme du rapport d/h suit un comportement linéaire en fonction de l’inverse de l’épaisseur :

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(\pi) - 1 + \mu \left(\frac{1}{2} - \ln(2) \right) \quad \text{III.14}$$

pour $d/h > 1.5$ (cf. annexe 2).

Cette expression est analogue à celle dérivée par Kaplan et Gehring [KAP 93]. Nous avons en plus inclus l'effet de μ pour permettre l'analyse des matériaux dont l'anisotropie K_u est à peine supérieure à $2\pi M_s^2$.

Nous avons représenté cette fonction sur la figure III.5, dans le cas où $\mu=1$:

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) \approx \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} - 0.048.$$

- Dans le cas des fortes épaisseurs, on peut montrer aisément, en utilisant le terme f_k dans l'expression de l'énergie démagnétisante (formule III.11), que la taille des domaines varie comme la racine carrée de l'épaisseur. On retrouve une expression analogue à celle proposée par Kittel [KIT 46] :

$$d = \sqrt{\frac{\pi^3 (1 + \sqrt{\mu}) D_0 h}{14 \zeta(3)}} \quad \text{avec } \zeta(3) \approx 1.20. \quad \text{III.15}$$

Nous avons représenté cette fonction sur la figure III.5, dans le cas où $\mu=1$:

$$d = 1.92 \sqrt{D_0 h}.$$

La figure III.5 représente la variation de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince, en unités réduites. Nous avons représenté le résultat du calcul complet ainsi que les deux fonctions approchées, aux faibles et aux fortes épaisseurs.

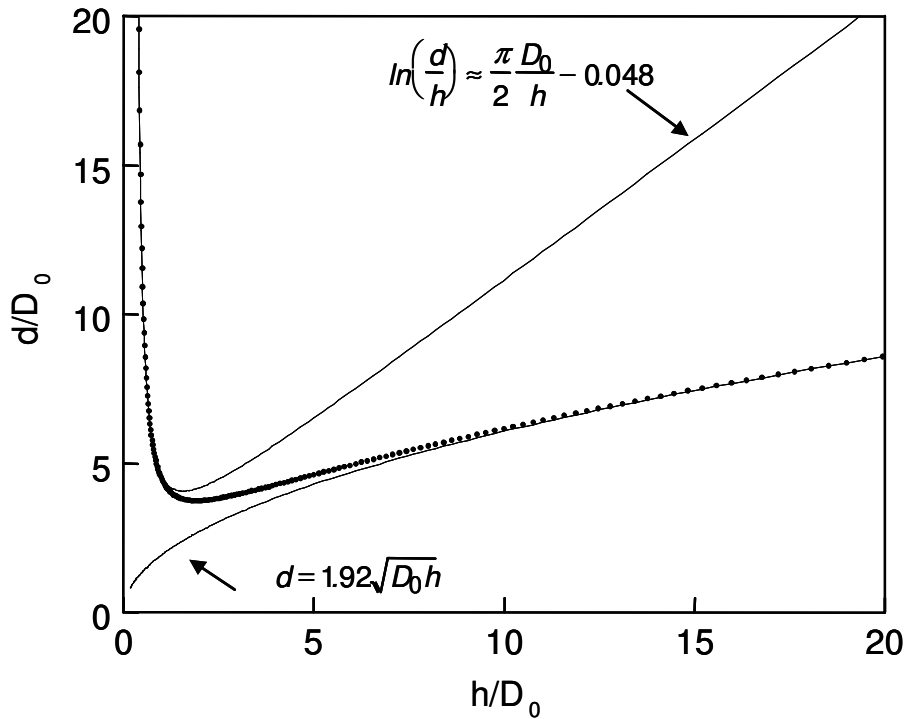


Fig. III.5 : Taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince, pour $\mu=1$. Le résultat du calcul complet est représenté point par point et les fonctions approchées en ligne continue.

b) Courbes d'aimantation en champ perpendiculaire

Il s'agit ici de minimiser l'énergie totale en considérant la présence d'un champ extérieur. En introduisant le terme f_c dans l'expression de l'énergie démagnétisante (formule III.11), nous montrons dans l'annexe 5 que les courbes d'hysteresis adoptent une forme caractéristique : l'aimantation augmente plus vite à l'approche de la saturation (Fig. III.6). Ce comportement est caractéristique des couches minces à anisotropie perpendiculaire renfermant des domaines magnétiques et il se traduit analytiquement par la relation que nous démontrons dans l'annexe 5, valable pour les faibles épaisseurs :

$$m = \frac{2}{\pi} \text{Arcsin} \left[\frac{\pi}{2} \chi_r (D_0/h, \mu) H_r \right]. \quad \text{III.16}$$

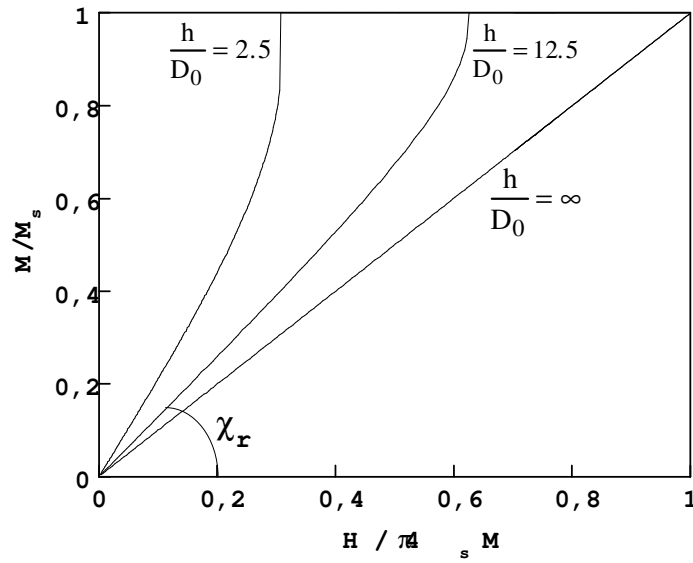


Fig. III.6 : Courbe d'aimantation d'un échantillon à anisotropie perpendiculaire, renfermant une structure en domaines magnétiques.

Nous avons développé les expressions qui permettent de rendre compte de l'évolution des courbes d'aimantation en fonction de l'épaisseur de la couche mince, par l'intermédiaire de la susceptibilité χ_r en champ nul. Nous avons montré que pour les faibles épaisseurs, le logarithme de la susceptibilité suit un comportement linéaire en fonction de l'épaisseur :

$$\ln(\chi_r) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(4) - 1 + \mu \left(\frac{1}{2} - \ln(2) \right) \quad \text{III.17}$$

pour $d/h > 1.5$ (cf. annexe 5).

Cette expression est remarquablement similaire à celle rendant compte de la variation de la taille des domaines magnétiques en champ nul (formule III.14).

c) Courbes d'aimantation en champ parallèle

Dans le cas d'un champ extérieur appliqué dans le plan de la couche mince, l'épaisseur des parois ne peut plus être négligée, c'est pourquoi les modèles sont beaucoup plus compliqués.

Une première approche est proposée par Druyvesteyn [DRU 73]. Il considère la variation de l'énergie de paroi avec le champ appliqué. Mais l'expression de l'énergie démagnétisante est obtenue en considérant une distribution de charges en surface de la forme d'une fonction créneau, l'angle entre l'aimantation et le plan de la couche mince étant égal à $\pm\theta_0$. Cette approximation n'est pas satisfaisante.

Une deuxième analyse est proposée par Müller et Goldstein [MUL 61, GOL 70] pour étudier l'approche à la saturation en champ parallèle. Cependant, cette analyse ne s'applique que pour les grandes épaisseurs telles que : $h \gg 2\sqrt{A/2M_s^2}$. Dans notre cas $2\sqrt{A/2M_s^2} \approx 11\text{nm}$ et nous étudions des échantillons d'épaisseur 5 à 50 nm, donc nous ne pouvons pas appliquer ce modèle.

Nous nous limiterons donc à l'interprétation qualitative des courbes d'aimantation en champ parallèle.

4) Expression de l'énergie totale dans le cas des matériaux à faible anisotropie uniaxiale ($K_u < 2\pi M_s^2$)

Dans le cas où $K_u < 2\pi M_s^2$, l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche mince. Dans ce cas, il existe une épaisseur critique h_c : en dessous de cette épaisseur, l'aimantation est dans le plan de la couche mince ; au dessus de cette épaisseur, il se développe une structure en rubans, c'est-à-dire que l'aimantation pointe alternativement vers l'une ou l'autre des faces de la couche mince. Cette structure dite " en rubans " est analogue à celle des domaines magnétiques et elle est formalisée par la même fonction sn (formule III.4). Cependant, dans le cas de la structure en rubans pour les faibles anisotropies, l'angle maximum θ_0 entre l'aimantation et le plan de la couche mince peut être inférieur à $\pi/2$ au centre d'un ruban, et la paroi entre deux rubans est très étendue.

Pour rendre compte des processus d'aimantation dans ce cas, on ne peut plus négliger l'épaisseur des parois et considérer que la distribution de charges en surface a la forme d'une fonction créneau. Le problème est donc plus compliqué. En champ nul, nous disposons d'un modèle pour le profil de l'aimantation (formule III.4) qui nous permet d'exprimer alors l'énergie magnétostatique. La minimisation de l'énergie totale rend compte de la largeur des rubans ainsi que de l'épaisseur critique h_c . Par contre, quand un champ extérieur est appliqué, nous n'avons pas de solution simple. En conséquence, pour l'étude des courbes d'aimantation dans ce cas des faibles anisotropies, nous nous sommes limités à une analyse qualitative.

Pour étudier le cas des matériaux à faible anisotropie, en champ nul, nous reprenons ici le modèle proposé par Sukstanskii et Primak [SUK 97]. Ce modèle est basé

sur un profil de l'aimantation de la forme sn, comme il a été proposé par Kaczer et al. [KAC 63] : $\sin \theta(x) = \sin \theta_0 \times \operatorname{sn}\left(\frac{x}{\Delta} \middle| \sin \theta_0\right)$. III.18

Cependant, alors que le paramètre Δ représentant l'épaisseur de la paroi est fixe chez Kaczer et al. (il est égal à $\delta = \sqrt{A/K_u}$), Sukstanskii et Primak laissent ce paramètre libre pour la minimisation de l'énergie totale, au même titre que l'angle maximum θ_0 de la structure en domaine. Ce degré de liberté supplémentaire permet de trouver des configurations de plus basse énergie qu'avec le formalisme de Kaczer et al.

Les différentes contributions à l'énergie totale e_t , dans le modèle de Sukstanskii et Primak, sont l'énergie d'échange e_A , l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline e_K , et l'énergie démagnétisante e_d : $e_t = e_A + e_K + e_d$.

- L'énergie d'échange est égale à $E = \int_0^d A \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 dx$ III.19

Elle s'écrit, en unités réduites :

$$e_A = \frac{A}{2\pi M_s^2} \cdot \frac{2}{d\Delta} \left[E(\sin \theta_0) - \cos^2 \theta_0 K(\sin \theta_0) \right]. \quad \text{III.20}$$

où $K(k)$ et $E(k)$ sont les intégrales elliptiques complètes du premier et du second type (voir annexe 4).

- L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline est égale à $E = \int_0^d K_u \cos^2 \theta dx$ III.21

Elle s'écrit en unités réduites :

$$e_K = \hat{K} \cdot \frac{2\Delta}{d} \left[E(\sin \theta_0) - K(\sin \theta_0) \right]. \quad \text{III.22}$$

- L'énergie démagnétisante est obtenue à partir des coefficients de Fourier du profil d'aimantation de la forme sn (formule III.18) :

$$e_d = \frac{4}{\alpha \pi^3} \left(\frac{\pi^2}{4K(\sin \theta_0)} \right)^2 \times \sum_{n=1, 3, 5, \dots} \frac{1}{\sinh^2 \left[n\pi K(\cos \theta_0) / 2K(\sin \theta_0) \right]} \times \frac{1}{n} \left[1 - \exp(-2n\pi\alpha) \right] \quad \text{III.23}$$

avec $\alpha = \frac{h}{2d} = \frac{h}{4\Delta K(\sin \theta_0)}$

Sukstanskii et Primak [SUK 97] montrent à partir de la minimisation de l'expression de l'énergie totale que l'épaisseur critique h_c au dessus de laquelle la structure en rubans est stable, peut être représentée en fonction de la constante d'anisotropie uniaxiale comme une fonction paramétrique :

$$K_u = M_s^2 \left[3u - (\pi + 3u)e^{(-\pi/u)} \right] \quad \text{III.24}$$

$$\text{et } h_c = \frac{\pi}{u} \sqrt{\frac{A}{M_s^2}} \left[u - (\pi + u)e^{(-\pi/u)} \right]^{-1/2}. \quad \text{III.25}$$

Pour une épaisseur h et une anisotropie uniaxiale K_u données, les paramètres d'équilibre Δ et θ_0 de la structure en rubans sont déterminés par la résolution du système à deux équations :

$$\begin{cases} d\epsilon_t / d\theta_0 = 0 \\ d\epsilon_t / d\Delta = 0 \end{cases} \quad \text{III.26}$$

La période de la structure en rubans est égale à $2d = 4\Delta K(\sin \theta_0)$. III.27

Pour les faibles épaisseurs, inférieures à h_c , la minimisation de l'énergie conduit à $\theta_0=0$: l'aimantation est dans le plan de la couche mince. A l'épaisseur critique, $\theta_0=0$ mais la largeur des parois Δ , ainsi que la période $2d$ de la structure en rubans, ont une valeur finie et $2d=2\pi\Delta$. Au delà de l'épaisseur critique h_c , la minimisation conduit à $\theta_0>0$: l'aimantation acquiert une composante hors du plan de la couche mince. Il se développe une structure en rubans, schématisée sur la figure III.2. Il n'existe pas d'expression simple pour la largeur (d) des rubans en fonction de l'épaisseur (h) de la couche mince, en dehors du domaine d'approximation $h \ll d$ traité par Sukstanskii et Primak [SUK 97]. Notons toutefois que pour une épaisseur h/D_0 donnée en unités réduites, la largeur des rubans dans le cas des faibles anisotropies (en unités réduites : d/D_0) est plus petite que la taille des domaines dans le cas des fortes anisotropies (en unités réduites : d/D_0) ; quand l'épaisseur h/D_0 augmente, la largeur des rubans d/D_0 se rapproche de la taille des domaines magnétiques d/D_0 .

5) Domaines de fermeture

Tous les modèles présentés jusqu'ici supposent que la direction de l'aimantation est uniforme suivant la normale au plan de la couche mince, et que le vecteur aimantation est dans le plan $\{yz\}$. Ils ne tiennent pas compte de l'éventuelle présence de domaines de fermeture, qui permettent au système de diminuer son énergie magnétostatique. L'expérience montre que l'existence et la forme de ces domaines dépend de l'épaisseur de la couche mince ainsi que de l'amplitude de l'anisotropie uniaxiale. Notons que dans tous les cas, la prise en compte des domaines de fermeture donne une taille de domaines supérieure à celle calculée en supposant une direction d'aimantation uniforme en z .

a) Couches minces de matériaux à forte anisotropie uniaxiale

Dans le cas des fortes anisotropies, il peut se développer des domaines de fermeture aux très grandes épaisseurs. C'est le cas par exemple dans des couches minces de magnéto-plombite ($\text{PbFe}_{11}\text{Al}_1\text{P}_{19}$), dont l'anisotropie uniaxiale s'élève à $\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2 = 3.4$, pour des épaisseurs supérieures à $7 \mu\text{m}$ [KAC 64]. Les domaines de fermeture ont l'allure présentée sur la figure III.7.

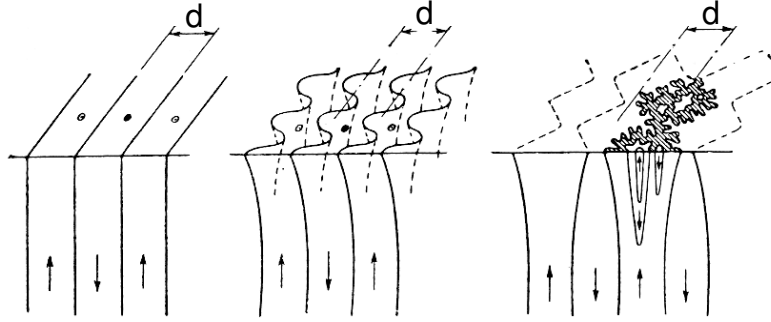


Fig. III.7 : Evolution schématique de la structure en domaines magnétiques proche de la surface, lorsque l'épaisseur augmente dans une couche mince de magnéto-plombite [KAC 64].

L'apparition de ces domaines de fermeture amène une déviation du comportement de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince par rapport à la loi en racine carrée (formule III.15) : avec les domaines de fermeture, la taille des domaines est proportionnelle à $h^{2/3}$. Kaczer [KAC 64] a pu retrouver théoriquement cette loi de variation en supposant la géométrie proposée sur la figure III.8 pour la forme des domaines. Ce type de domaines de fermeture ne sera valable que pour les matériaux ayant une très grande anisotropie uniaxiale et les couches minces de très grandes épaisseurs. Dans notre cas, l'épaisseur des couches minces est toujours inférieure à 50 nm, nous ne sommes donc pas concernés par ce type de domaines de fermeture.

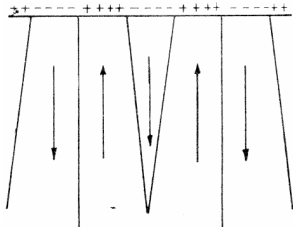


Fig. III.8 : Modèle de la structure en domaines, proposée par Kaczer [KAC 64] pour représenter les domaines de fermeture dans les matériaux de forte anisotropie uniaxiale.

b) Couches minces de matériaux à faible anisotropie uniaxiale

Pour les matériaux de plus faible anisotropie, les domaines de fermeture apparaîtront pour des épaisseurs plus faibles, et Kittel [KIT 46] a proposé la configuration reproduite sur la figure III.9. Il a montré que la taille des domaines suit dans ce cas une loi en racine carrée :

$$d = \sqrt{2\sigma_w h / K_u} . \quad \text{III.28}$$

Notons que ce modèle ne tient pas compte de l'extension des parois.

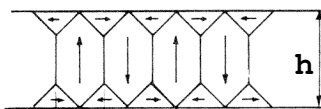


Fig. III.9 : Configuration en domaines magnétiques proposée par Kittel [KIT 46].

Dans notre cas, nous allons être confrontés à des échantillons dont l'anisotropie est très faible (par exemple, $\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2 = 0.4$ pour les échantillons C/C-TEMPS), donc nous souhaitons tenir compte à la fois de l'extension des parois et de la présence de

domaines de fermeture. Murayama [MUR 66] propose une solution à ce problème : les différentes contributions à l'énergie totale sont exprimées en fonction du vecteur aimantation, qui est défini par les angles θ et ϕ (Figure III.10), fonctions de la variable x mais également z . Il montre que la taille des domaines varie suivant la loi :

$$d = \sqrt{2h} \left(\pi^2 \frac{A}{K_u \cdot 2\pi M_s^2} (K_u + 2\pi M_s^2) \right)^{1/4} \quad \text{III.29 retrouvant}$$

ainsi un comportement en racine carrée, comme Kittel [KIT 46].

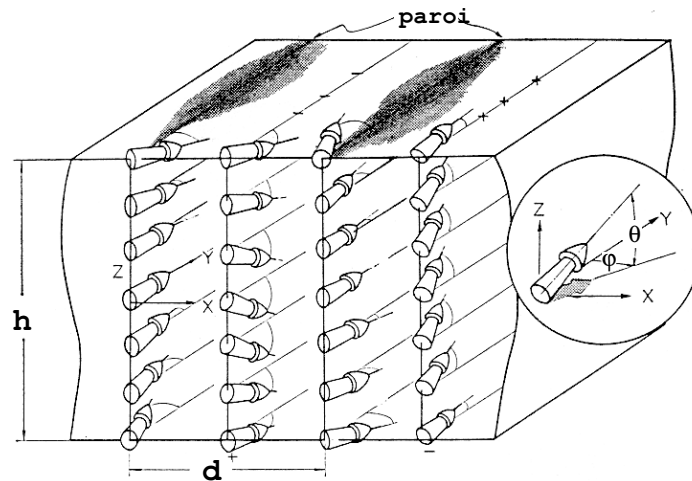


Fig. III.10 : Distribution des vecteurs aimantation envisagée par Murayama [MUR 66].

6) Modélisation analytique : résumé

Les modèles basés sur une minimisation de l'énergie magnétique du système permettent donc de calculer les paramètres suivants :

- les profils d'aimantation en champ nul ;
- dans le cas des fortes anisotropies, la taille des domaines en champ nul et la susceptibilité en champ perpendiculaire (nous avons développé notamment des expressions analytiques simples dans le cas des faibles épaisseurs) ;
- dans le cas des faibles anisotropies, l'épaisseur critique au dessus de laquelle se développe une structure en rubans.

Nous disposons également des lois donnant le comportement de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince, dans le cas où des domaines de fermeture sont présents.

Ces modèles sont attrayants dans la mesure où ils permettent d'analyser les données expérimentales par des relations simples. Cependant, il n'existe pas toujours de solution analytique simple. Par exemple, le traitement par ces modèles des cas où l'anisotropie est faible reste très limité. Pour être plus précis, des calculs numériques de micromagnétisme sont nécessaires. Néanmoins, les modèles cités nous ont permis d'exploiter la plupart de nos résultats.

B - Mesures d'aimantation

1) Principe

Les courbes d'aimantation ont été mesurées par différentes méthodes sur un magnétomètre à échantillon vibrant (Vibrating Sample Magnetometer - VSM), un magnétomètre à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device - système supraconducteur à interférences quantiques) et par des méthodes magnéto-optiques. Nous proposons un rapide descriptif des appareils utilisés pour dégager les avantages et les inconvénients des différents dispositifs ainsi que les informations spécifiques données par chacune des méthodes.

a) Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et magnétomètre à SQUID

Les mesures VSM ont été réalisées sur un magnétomètre de la marque Oxford. Le principe de la mesure VSM consiste à détecter la variation d'induction magnétique produite par le mouvement oscillant de l'échantillon à travers les bobines de mesure. L'échantillon est fixé au bout d'un support qui oscille verticalement. L'amplitude du mouvement est de 1.5 mm et la fréquence est égale à $\omega/2\pi = 55\text{Hz}$. La force électromotrice qui apparaît dans les bobines de mesure est de la forme $e = e_0 \sin \omega t$. Elle est mesurée par un amplificateur à détection synchrone dont la référence est la fréquence de vibration de l'échantillon. L'amplitude e_0 est proportionnelle à l'aimantation de l'échantillon. Le champ appliqué dans la direction parallèle au déplacement de l'échantillon peut atteindre $\pm 8\text{ T}$ et la sensibilité de mesure est égale à $5 \cdot 10^{-6}\text{ emu}$.

Les mesures SQUID ont été réalisées sur un magnétomètre de la marque Quantum Design. Le principe consiste à mesurer le flux magnétique qui traverse un anneau supraconducteur fermé par une jonction Josephson (dit SQUID) par son effet sur les interférences quantiques. L'échantillon est fixé au bout d'un support et se déplace entre les bobines de détection couplées au SQUID. Le champ appliqué dans la direction parallèle au déplacement de l'échantillon peut atteindre $\pm 5.5\text{ T}$ et la sensibilité de la mesure est égale à 10^{-7} emu .

Pour ces deux types de mesure par VSM ou SQUID, les courbes d'aimantation doivent être corrigées de la contribution diamagnétique provenant essentiellement des substrats MgO, ainsi que de la contribution paramagnétique du fer, présent dans les substrats MgO à l'état d'impuretés. A titre d'exemple, nous présentons une courbe brute mesurée au VSM, pour un échantillon codéposé à 350°C d'épaisseur 46.8 nm et mesuré dans un champ appliqué perpendiculairement au plan de la couche mince (Fig. III.11). La contribution diamagnétique due au substrat est linéaire et indépendante de la température ; la contribution paramagnétique des impuretés de fer dans les substrats est linéaire à température ambiante. Ces contributions peuvent donc être corrigées par soustraction de la pente observée aux forts champs. Les courbes d'aimantation présentées par la suite sont corrigées de cette contribution. Comme l'illustre la figure, l'aimantation à saturation des couches d'alliage FePd peut être déduite des courbes d'aimantation.

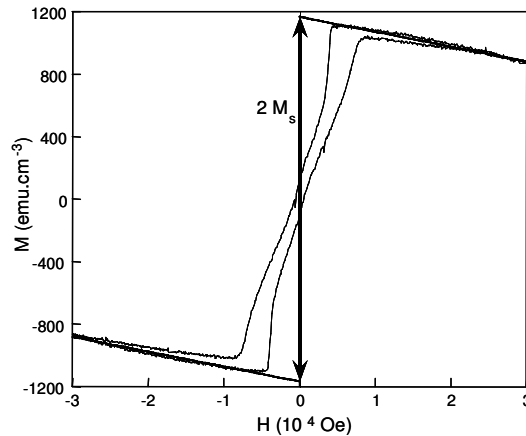


Fig. III.11 : Courbe d'aimantation mesurée au VSM. La contribution linéaire correspond principalement au signal diamagnétique du substrat MgO. M_s est l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique FePd. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de la couche mince de FePd, C-350 d'épaisseur 46.8 nm.

Pour ces deux types de mesure par VSM ou SQUID, les échantillons sont maintenus par un ruban de Téflon à l'intérieur de pailles en polypropylène. L'alignement des échantillons le long du champ appliqué est peu précis, mais l'intérêt de ces méthodes est double : le champ maximum qui peut être appliqué est élevé et les mesures donnent accès à une valeur absolue de l'aimantation à saturation, avec une incertitude évaluée à $\pm 15\%$. Nous avons utilisé ces méthodes pour observer la forme générale des courbes d'aimantation, avec un champ extérieur appliqué successivement dans le plan des couches minces et perpendiculairement à celui-ci, et pour déterminer l'aimantation à saturation.

b) Méthodes optiques

Le principe des effets magnéto-optiques est détaillé dans la partie III-E consacrée à la mesure de l'effet Kerr polaire dans les couches minces d'alliage FePd. Les effets magnéto-optiques des matériaux peuvent également être utilisés pour mesurer des courbes d'aimantation. Ceux-ci proviennent de l'anisotropie optique qui change la polarisation d'une lumière incidente polarisée linéairement en une lumière polarisée elliptiquement, après réflexion ou transmission à travers un support magnétique. En réflexion, on distingue trois types d'effets, dits effets Kerr, selon l'orientation relative de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de la lumière : l'effet Kerr transverse, longitudinal ou polaire.

Un banc de mesure basé sur le principe de l'effet Kerr transverse a été mis au point au laboratoire pour mesurer les courbes d'aimantation avec un champ extérieur appliqué dans le plan des couches minces. Dans cette configuration, le champ est appliqué perpendiculairement au plan d'incidence de la lumière. Le signal détecté est l'intensité de la lumière réfléchiée par l'échantillon. Le champ maximum appliqué est égal à ± 0.08 T.

Un spectromètre a été utilisé pour mesurer des courbes d'aimantation sur le principe de l'effet Kerr polaire. Le champ extérieur, appliqué perpendiculairement au plan des couches, peut varier jusqu'à ± 1.8 T. La longueur d'onde du faisceau est égale à 500 nm et correspond à une énergie de 2.48 eV.

Les avantages des méthodes optiques sont la facilité d'alignement de l'échantillon, la rapidité de la mesure, un bon rapport signal/bruit et une grande sensibilité. Cependant,

avec les montages expérimentaux dont nous avons pu disposer, les études par ces méthodes sont restreintes aux faibles valeurs de champ extérieur.

2) Aimantation à saturation

Nous avons déterminé l'aimantation à saturation de l'alliage $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ à partir des mesures de courbes d'aimantation réalisées au VSM et au SQUID. Nous avons utilisé un échantillon à gradient d'épaisseur, élaboré en codéposant l'alliage à 350°C . Cet échantillon a été élaboré plus spécifiquement pour étudier l'évolution de la susceptibilité magnétique et de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince d'alliage ; ces résultats sont présentés plus loin dans ce mémoire. En déplaçant le cache motorisé à vitesse constante devant l'échantillon pendant le dépôt, nous avons obtenu un échantillon de longueur 20 mm dont l'épaisseur varie linéairement de 5 à 50 nm. Nous avons divisé cet échantillon à la scie à fil en 10 morceaux de surface égale (12 mm^2) puis mesuré ces morceaux indépendamment au VSM et au SQUID. La figure III.12 représente l'aimantation à saturation par unité de surface de ces échantillons, mesuré en champ perpendiculaire. Ces données sont correctement ajustées par une droite passant par l'origine. La pente de cette droite donne une évaluation de l'aimantation par unité de volume : $1030 (\pm 15\%) \text{ emu/cm}^3$. Nous rappelons que l'étude structurale a montré que cet échantillon est formé de la phase ordonnée L1_0 . La valeur de l'aimantation à saturation que nous avons obtenue est en bon accord avec les données de la littérature concernant la phase ordonnée $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$, qui varient de 1050 à 1100 emu/cm^3 [KUS 64, MIY 90, ZHA 94].

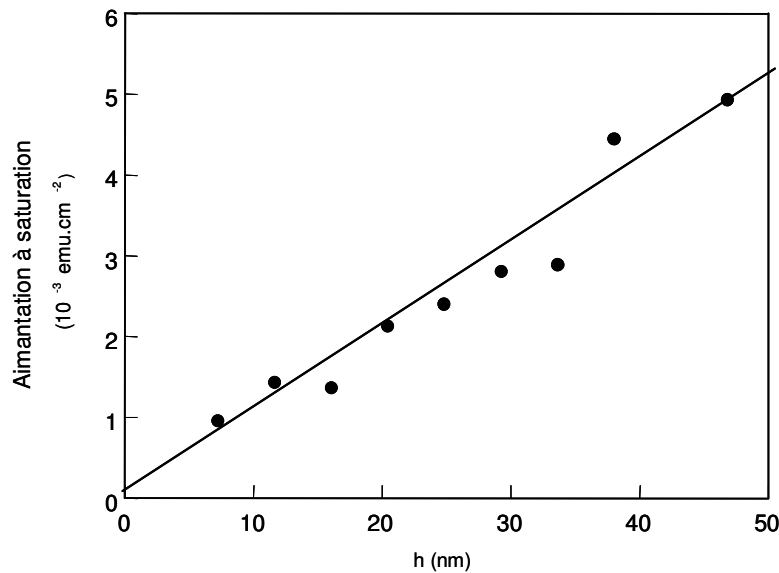


Fig. III.12 : Aimantation à saturation par unité de surface des échantillons codéposés à 350°C , en fonction de leur épaisseur moyenne. Les mesures ont été faites en champ perpendiculaire, à température ambiante, au VSM.

Expérimentalement, nous n'avons pas observé de différence entre les aimantations à saturation des phases $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ ordonnées et désordonnées. Les valeurs de l'aimantation

à saturation de la phase $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ désordonnée que l'on trouve dans la littérature varient de 1050 emu/cm^3 à 1070 emu/cm^3 [KUS 64, MIY 86b] et sont donc également très proches de celles de la phase ordonnée L1_0 .

Nous n'avons pas non plus observé d'anisotropie de l'aimantation à saturation en fonction de la direction du champ extérieur, appliqué dans le plan des couches ou perpendiculairement à celles-ci, ce qui n'est pas surprenant étant donnée l'incertitude sur la mesure de l'aimantation à saturation ($\pm 15\%$).

3) Cycles d'aimantation

Nous avons mesuré les courbes d'aimantation avec un champ extérieur appliqué dans le plan des couches et perpendiculairement à celui-ci. L'analyse de ces courbes permet de déterminer la direction de l'axe de facile aimantation et donne une évaluation de la constante d'anisotropie.

a) Couches minces codéposées à température ambiante

i - Codépôt à température ambiante (C-TA)

Nous avons mesuré les courbes d'aimantation dans le plan et perpendiculairement au plan de l'échantillon C-TA d'épaisseur 50 nm (Fig. III.13). Le champ à saturation appliqué dans le plan est quasi nul alors qu'un champ magnétique de 3T est nécessaire pour saturer l'échantillon dans la direction perpendiculaire : l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche mince. La courbe d'aimantation en champ perpendiculaire se caractérise par un comportement linéaire autour de l'origine et cette linéarité reste valable dans un grand domaine de valeurs de champ appliqué. Dans ce domaine, nous pouvons supposer une rotation uniforme de l'aimantation avec l'intensité du champ magnétique.

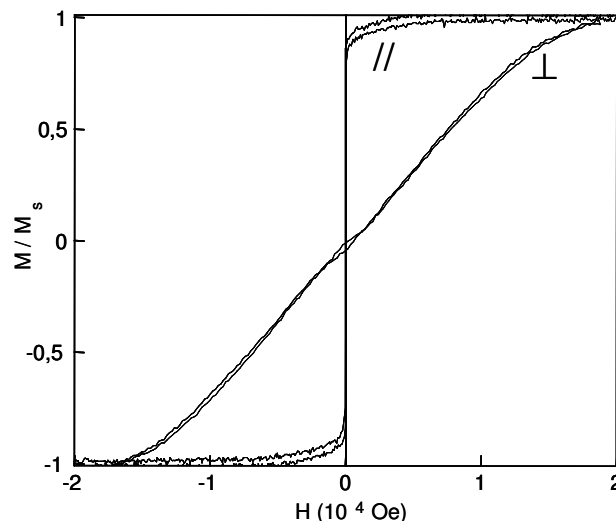


Fig. III.13 : Courbes d'aimantation en champ parallèle (//) mesurée au VSM et perpendiculaire (⊥) mesurée par effet Kerr polaire pour l'échantillon C-TA.

La constante d'anisotropie effective est évaluée par la différence des aires au dessus des courbes d'aimantation mesurées en champ parallèle et perpendiculaire. Nous trouvons $K_{\text{eff}} = -7.1 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$. Cette énergie résulte de l'effet de l'anisotropie magnéto-cristalline, des effets magnéto-élastiques et de l'effet de forme :

$$K_{\text{eff}} = K_u + B_1(e_{//} - e_{\perp}) - 2\pi M_s^2. \quad \text{III.30}$$

B_1 est la première constante magnéto-élastique ; $e_{//}$ et e_{\perp} sont les déformations élastiques du réseau cristallin dans le plan et perpendiculairement au plan de la couche mince. Nous supposons que la déformation du réseau dans le plan de la couche mince est une déformation biaxiale : $e_{xx} = e_{yy} = e_{//}$.

En transposant l'effet magnéto-élastique de volume, nous pouvons estimer l'ordre de grandeur de l'énergie d'anisotropie résultant de l'effet magnéto-élastique dans la couche mince. La première constante magnéto-élastique pour l'alliage FePd est égale à : $B_1 = -1.72 \times 10^7 \text{ erg / cm}^3$ [MIY 86c].

La déformation du réseau cristallin dans le plan $e_{//}$ est estimée à partir du paramètre de maille $a_{//}$ mesuré expérimentalement par diffraction de rayons X ($a_{//} = 3.86 \text{ Å}$, Table II.3) et du paramètre de maille de la phase γ de l'alliage massif relaxé, valeur extraite de la littérature ($a = 3.80 \text{ Å}$ [PEA 64]). Nous obtenons $e_{//} \approx 1.6\%$.

La déformation du réseau cristallin dans la direction perpendiculaire (e_{\perp}) est estimée à partir de la déformation mesurée dans le plan ($e_{//}$) et des constantes élastiques du matériau (C_{11} et C_{12}). En supposant que la contrainte dans la direction perpendiculaire au plan de la couche mince est nulle ($\sigma_{zz} = 0$), nous obtenons la relation :

$$e_{\perp} = -\frac{C_{12}}{C_{11}}(2e_{//}). \quad \text{III.31}$$

Les constantes élastiques sont tirées de la littérature : $C_{12}/C_{11} \approx 0.86$ [CHE 93].

Nous obtenons ainsi $e_{\perp} \approx -2.8\%$.

Les effets magnéto-élastiques favorisent donc une direction planaire pour l'aimantation et l'énergie d'anisotropie correspondante est évaluée à :

$$B_1(e_{//} - e_{\perp}) \approx -0.8 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3.$$

Cette valeur correspond à une estimation grossière de l'énergie d'anisotropie résultant de l'effet magnéto-élastique. Nous ne disposons pas de moyens pour mesurer plus précisément cette énergie. Cette valeur est dans l'incertitude sur la mesure de l'anisotropie magnéto-cristalline.

L'énergie de champ démagnétisant est : $2\pi M_s^2 = 6.7 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$.

Nous obtenons donc $K_u = 0.4(\pm 1) \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$.

Nous en concluons que l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline est négligeable. Ceci n'est pas surprenant puisque cet échantillon n'a pas révélé d'ordre à longue distance (Table II.2) et les mesures EXAFS ont montré que l'environnement des atomes Fe est isotrope (Table II.7).

ii - Codépôt à température ambiante, suivi par un recuit à 420°C (C-TA/R-420)

Pour l'échantillon C-TA/R-420 d'épaisseur 50 nm, l'axe de facile aimantation est également dans le plan de la couche mince (Fig. III.14). La constante d'anisotropie effective mesurée par la méthode des aires est $K_{\text{eff}} = -5.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$. D'après les résultats de diffraction de rayons X, la structure de la couche est chimiquement désordonnée et la déformation du réseau cristallin dans le plan est très faible : moins de 0.5%. Les effets magnéto-élastiques sont donc négligeables. La valeur de la constante d'anisotropie uniaxiale est donc $K_u = 1.1(\pm 1) \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$. Ceci montre que l'anisotropie magnéto-cristalline est négligeable.

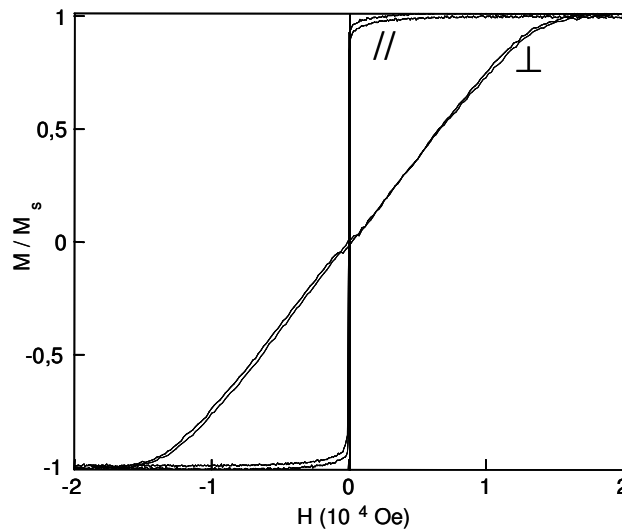


Fig. III.14 : Courbes d'aimantation en champ parallèle (//) mesurée au VSM et perpendiculaire (⊥) mesurée par effet Kerr polaire pour l'échantillon C-TA/R-420.

b) Couches minces codéposées à 350°C (C-350)

Nous avons étudié les courbes d'aimantation d'échantillons C-350 de différentes épaisseurs. Pour cela, nous avons utilisé un échantillon à gradient d'épaisseur. En déplaçant le cache motorisé à vitesse constante devant l'échantillon pendant le dépôt, nous avons obtenu un échantillon de longueur 20 mm dont l'épaisseur varie linéairement de 5 à 50 nm. Nous avons découpé cet échantillon à la scie à fil en 10 morceaux de surface égale (12 mm^2) puis mesuré les courbes d'aimantation de ces morceaux séparément au VSM. A titre d'exemple, la figure III.15 représente les courbes d'aimantation obtenues avec un champ extérieur appliqué dans le plan ou perpendiculairement au plan des couches d'épaisseur moyenne 11.6, 29.2 et 46.8 nm. Ces cycles montrent que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan des couches, quelle que soit l'épaisseur de la couche mince.

Les courbes en champ perpendiculaire sont caractéristiques des couches minces à aimantation perpendiculaire renfermant des domaines magnétiques, comme nous l'avons vu précédemment lors de la revue des modèles : en particulier, l'aimantation augmente plus rapidement à l'approche de la saturation.

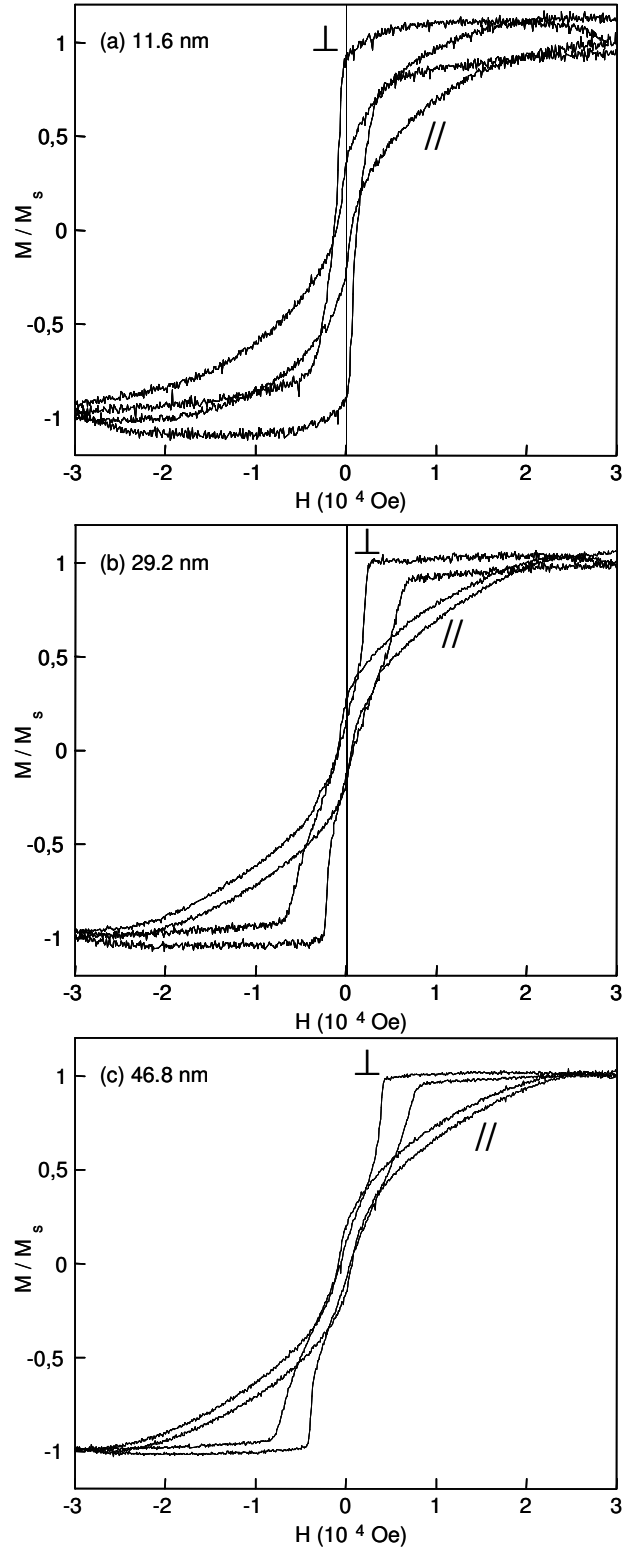


Fig. III.15 : Courbes d'aimantation mesurées au VSM en champ parallèle (//) et perpendiculaire (\perp) pour les échantillons C-350 d'épaisseur (a) 11.6, (b) 29.2 et (c) 46.8 nm.

- Mesure des courbes en “ désaimantation alternative ”

Nous avons cherché à analyser quantitativement les courbes d'aimantation en champ perpendiculaire dans le cadre des modèles présentés précédemment. Cependant, les cycles d'aimantation mesurés expérimentalement présentent une rémanence et une coercivité non négligeable. Ces effets dus à des processus irréversibles ne sont pas pris en compte par les modèles. Pour interpréter les données expérimentales dans le cadre des modèles d'équilibre, nous avons utilisé une procédure de mesure de courbes d'aimantation, appelée " désaimantation alternative ". Pour chaque valeur de champ appliqué, nous avons obtenu une configuration proche de la configuration d'équilibre par la méthode suivante : après avoir saturé l'échantillon dans un champ supérieur d'au moins 20% au champ de saturation, le champ magnétique est amené à la valeur de mesure par des oscillations d'amplitude décroissante (Fig. III.16). Cette procédure a été répétée après saturation dans un champ positif et négatif : lorsque les deux courbes obtenues se superposent, nous pouvons conclure que la procédure a permis d'obtenir une configuration proche de la configuration d'équilibre, pour chaque valeur de champ appliqué. Les courbes d'aimantation mesurées par ce procédé sont représentées point par point à l'intérieur des cycles d'hystérésis irréversibles sur la figure III.17.

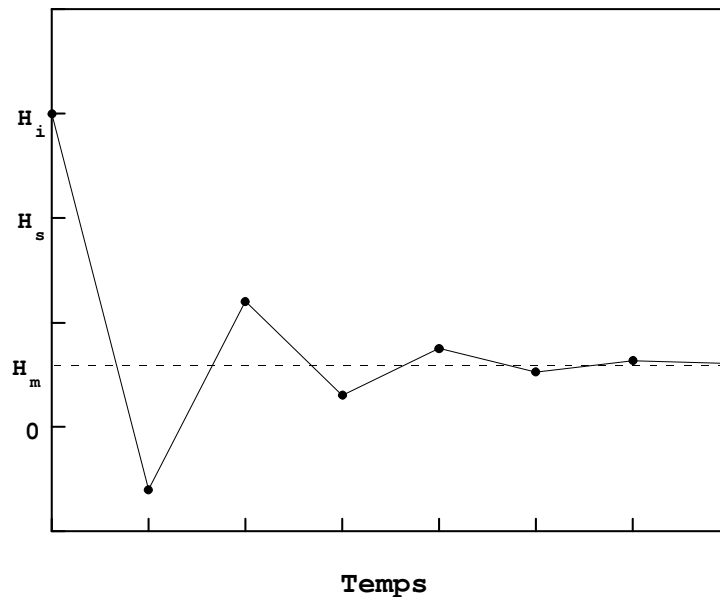


Fig. III.16 : Variation du champ magnétique extérieur H en fonction du temps, pendant la procédure de désaimantation alternative (H_i est le champ initial, supérieur au champ de saturation H_s , et H_m est le champ de mesure).

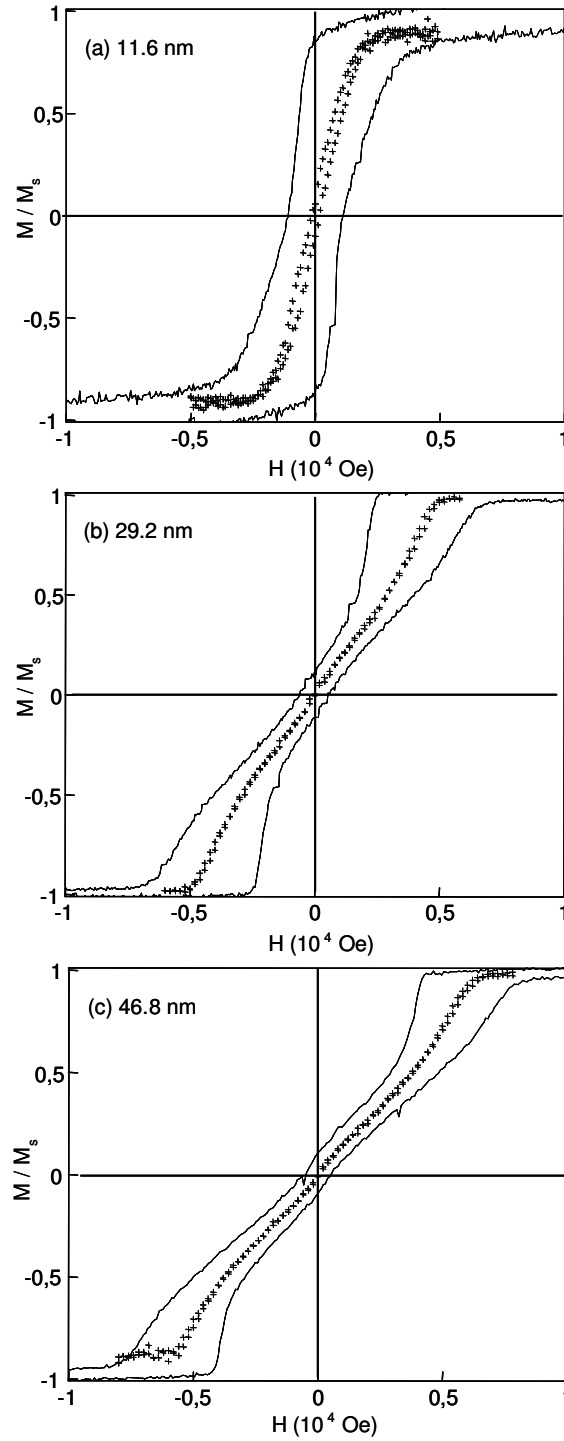


Fig. III.17 : Courbes d'aimantation mesurées au VSM en champ perpendiculaire, pour les échantillons C-350 d'épaisseur (a) 11.6, (b) 29.2 et (c) 46.8 nm. La ligne continue correspond à la courbe d'hysteresis mesurée en variant le champ appliqué de +3T à -3T puis +3T. Les croix représentent la courbe d'aimantation mesurée point par point en appliquant la procédure de désaimantation alternative, décrite par la figure III.16.

Les courbes d'aimantation d'équilibre ont la forme caractéristique de celles des couches minces à aimantation perpendiculaire : un comportement linéaire à l'origine puis une augmentation plus rapide de l'aimantation à l'approche de la saturation. Ce comportement se traduit analytiquement dans le cadre des modèles d'équilibre par la relation que nous démontrons dans l'annexe 5 : $m = \frac{2}{\pi} \arcsin\left[\frac{\pi}{2} \chi_r(D_0/h, \mu) H_r\right]$ (formule A5.16).

Cependant, l'arrondi observé sur les courbes expérimentales à l'approche de la saturation n'est pas attendu d'après les modèles. Cette caractéristique des courbes expérimentales peut s'expliquer par le changement de la forme des domaines magnétiques (de bandes en bulles), comme l'ont montré Cape et Lehman [CAP 71]. C'est pourquoi les courbes ne peuvent pas être ajustées par la fonction arcsinus à l'approche de la saturation. Aux faibles épaisseurs, l'arrondi peut aussi provenir de la présence d'un gradient d'épaisseur dans les échantillons : à chacune de ces épaisseurs correspond un champ à saturation. Sur les courbes d'aimantation expérimentales, l'aimantation mesurée à l'approche de la saturation est une valeur moyenne. Quand le gradient d'épaisseur n'est pas négligeable devant l'épaisseur moyenne de l'échantillon, cet effet peut conduire à un arrondissement de la courbe à l'approche de la saturation. Pour toutes ces raisons, il est préférable de restreindre l'analyse des courbes d'aimantation à celle de la susceptibilité en champ nul sans tenir compte de l'approche à la saturation.

Pour l'analyse quantitative des données, nous avons également restreint l'étude aux épaisseurs variant de 16.0 à 46.8 nm. Pour les 2 échantillons les plus fins d'épaisseur moyenne 7.2 et 11.6 nm, les points de la courbe d'aimantation obtenus après une désaimantation partant d'un champ positif ou négatif ne se superposent pas parfaitement (Fig. III.17-a). Cela montre que la procédure de désaimantation alternative a été insuffisante : la structure magnétique de ces échantillons n'atteint pas l'équilibre et les équations du modèle ne sont donc pas applicables. Pour atteindre l'équilibre, il faudrait peut-être envisager des oscillations de champs de plus grande amplitude ou bien un amortissement des oscillations du champ appliqué plus lent.

- Analyse de la susceptibilité

La susceptibilité a été déterminée à partir des courbes d'aimantation, mesurées en désaimantation alternative. D'après les modèles d'équilibre (cf. annexe 5), le logarithme de la susceptibilité suit une dépendance linéaire en fonction de l'inverse de l'épaisseur de la couche mince :

$$\ln(\chi_r) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(4) - 1 + \mu \left(\frac{1}{2} - \ln(2) \right) \quad (\text{formule III.17})$$

Nous avons montré en annexe que ce modèle est valable quelle que soit l'épaisseur (Fig. A5.1).

La figure III.18 représente le logarithme de la susceptibilité en fonction de l'inverse de l'épaisseur. Les points expérimentaux sont ajustés par une droite de pente $D_0=16$ nm. L'ordonnée à l'origine est $b = 0.023$. En théorie, b est relié à μ par la relation : $b = \ln(4) - 1 + \mu(1/2 - \ln(2))$. Mais comme la valeur du préfacteur est de μ faible : $(1/2 - \ln(2)) \approx -0.19$, nous ne pouvons pas compter sur cette relation pour déterminer avec précision la valeur de μ .

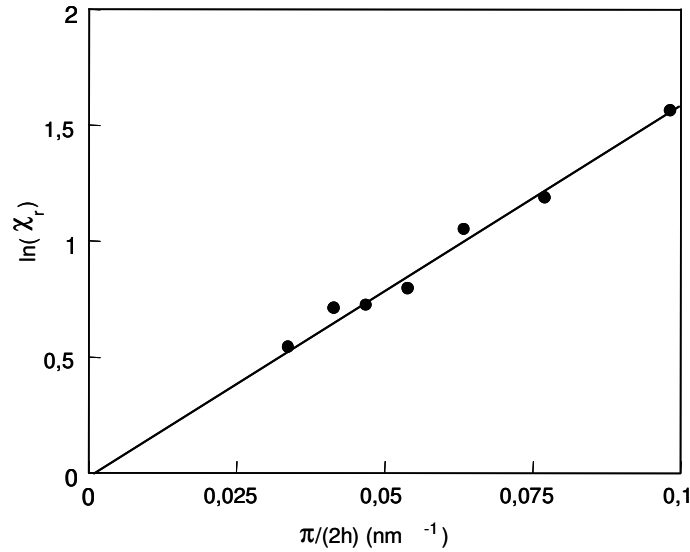


Fig. III.18 : Variation du logarithme de la susceptibilité χ_r en fonction de $\pi/2h$.
(h est l'épaisseur de la couche mince)

- Evaluation de la constante d'anisotropie uniaxiale et de la constante d'échange

La valeur de la constante d'anisotropie magnéto-cristalline est évaluée par la différence des aires au dessus des courbes d'aimantation mesurées en champ parallèle et perpendiculaire. Nous trouvons $K_u = 10.3 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$, d'où $\mu = 1.65$. Comme on l'attendait puisque le degré d'ordre dans cet échantillon n'est pas parfait, la valeur de la constante d'anisotropie est inférieure à la valeur donnée dans la littérature pour la phase ordonnée $L1_0$ de l'alliage massif : 20×10^6 à $30 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$ [KUS 64, MIY 90, ZHA 94]. Nous remarquons que la valeur $\mu=1.65$ prédit une ordonnée à l'origine $b=0.068$ pour la variation linéaire de $\ln(\chi_r)$ en fonction de $\pi/2h$. Cette valeur est proche de la valeur expérimentale : $b=0.023$. Ceci montre que la démarche d'analyse des données est cohérente.

Au terme de l'analyse des courbes d'aimantation, nous connaissons les valeurs de l'aimantation à saturation M_s , de la constante d'anisotropie K_u et de la densité d'énergie de paroi $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u} = D_0 \times 2\pi M_s^2$. Nous pouvons donc évaluer la valeur de la constante d'échange A et nous trouvons $A = 6.9 \times 10^{-7} \text{ erg / cm}$. A titre de comparaison, nous rappelons que la constante d'échange du fer pur vaut 10^{-6} erg / cm . En première approximation, la constante d'échange est influencée par la nature chimique des premiers voisins, et dans la couche mince C-TA, l'expérience EXAFS a montré que la concentration en atomes Fe premiers voisins d'un atome Fe est égale à 70% (Table II.7). Kimura et Nosé [KIM 62] rapportent l'effet sur la constante d'échange, de l'addition d'atomes Pd dans un échantillon de nickel. Ils déterminent la constante d'échange expérimentalement par une expérience de résonance de spin, et ils trouvent que la constante d'échange de l'alliage $\text{Ni}_{65}\text{Pd}_{35}$ est environ égale aux 2/3 de la constante du nickel pur. Par analogie à ce résultat, la valeur que nous avons obtenue pour l'alliage FePd comparée à celle du fer pur, a le bon ordre de grandeur.

En résumé, les paramètres caractéristiques de la phase élaborée à 350°C sont les suivants : $M_s = 1030 \text{ emu / cm}^3$, $K_u = 10.3 \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$ et $A = 6.9 \times 10^{-7} \text{ erg / cm}$.

- Profil d'aimantation

Nous pouvons maintenant proposer un profil d'aimantation à partir du modèle de Kaczer et al. [KAC 63] pour une couche C-350 d'épaisseur 50 nm par exemple (Fig. III.19). La taille attendue des domaines magnétiques est 64 nm.

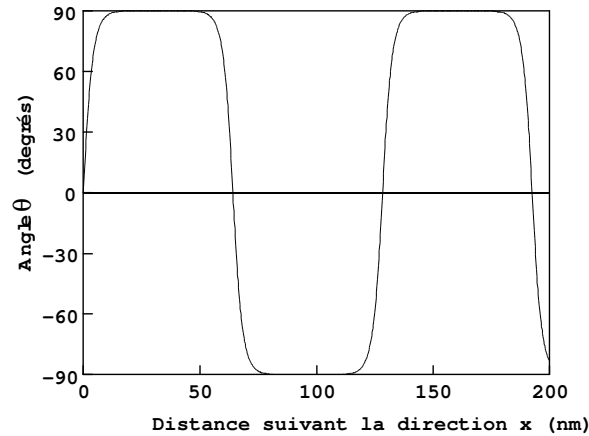


Fig. III.19 : Profil d'aimantation calculé pour l'échantillon C-350 (épaisseur 50 nm).

c) Dépôts alternés en couche par couche (C/C-TEMPS et C/C-RHEED)

Nous avons mesuré les courbes d'aimantation de deux échantillons élaborés en dépôt alterné couche par couche : le premier, contrôlé par le temps, a une épaisseur de 50 nm (Fig. III.20) et le second, contrôlé par les oscillations RHEED, a une épaisseur de 10 nm (Fig. III.21).

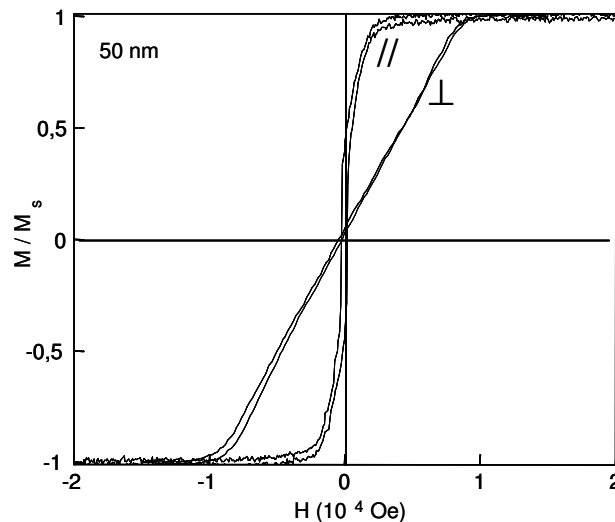


Fig. III.20 : Courbes d'aimantation en champ parallèle (//) mesurée au VSM et perpendiculaire (⊥) mesurée par effet Kerr polaire pour l'échantillon C/C-TEMPS d'épaisseur 50 nm.

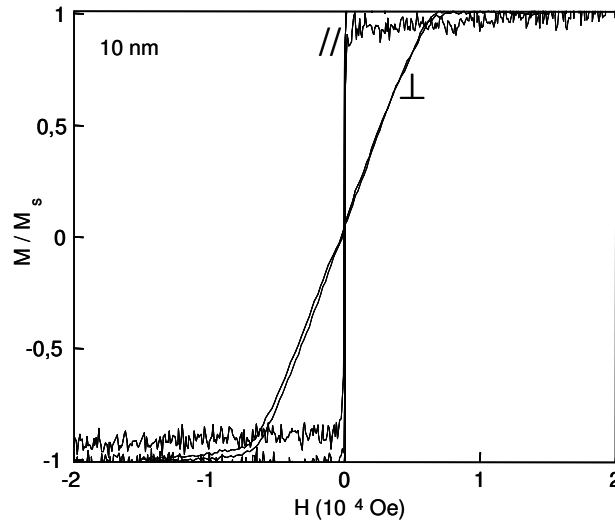


Fig. III.21 : Courbes d'aimantation en champ parallèle (//) mesurée au VSM et perpendiculaire (⊥) mesurée par effet Kerr polaire pour l'échantillon C/C-RHEED d'épaisseur 10 nm.

Pour ces deux échantillons, l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche mince. Les constantes d'anisotropie effective, mesurées par la méthode des aires entre les courbes d'aimantation, sont respectivement $-4.1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ pour le dépôt C/C-TEMPS et $-2.9 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ pour le dépôt C/C-RHEED. Pour ces deux échantillons, où l'ordre chimique est un ordre local, il est difficile d'évaluer la contribution des effets magnéto-élastiques : nous ne connaissons pas le paramètre de maille d'équilibre des phases partiellement ordonnées donc nous ne pouvons pas évaluer les contraintes résiduelles dans les couches minces. Quoiqu'il en soit, l'énergie d'anisotropie résultant des effets magnéto-élastiques sera inférieure à $-1.0 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ (cette limite est évaluée en considérant que les paramètres de maille des phases relaxées sont ceux de la phase désordonnée γ). Si nous négligeons les effets magnéto-élastiques, nous trouvons les ordres de grandeur suivants pour les constantes d'anisotropie uniaxiale : $K_u = 2.6(\pm 1) \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ pour l'échantillon C/C-TEMPS, et $K_u = 3.8(\pm 1) \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ pour l'échantillon C/C-RHEED.

Pour ces deux échantillons, la constante d'anisotropie effective K_{eff} est négative : l'axe de facile aimantation est dans le plan des couches. Nous pouvons calculer à l'aide du modèle de Sukstanskii et Primak [SUK 97] les épaisseurs critiques à partir desquelles une structure en rubans se développe pour ces valeurs d'anisotropie (Fig. III.22). Nous introduisons, pour la constante d'échange, la valeur déterminée précédemment lors de l'analyse de l'échantillon codéposé à 350°C : $A = 6.9 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$, ce qui ne constitue qu'une première approche puisque l'environnement chimique des atomes est différent.

- Pour l'échantillon C/C-RHEED et $K_u = 3.8 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$, l'épaisseur critique est évaluée à 17 nm (Fig. III.22). Or l'épaisseur de l'échantillon est 10 nm, donc l'aimantation est dans le plan de la couche mince, sans composante hors du plan. Ceci se traduit par un champ à saturation très faible en parallèle : environ 50 Oe.

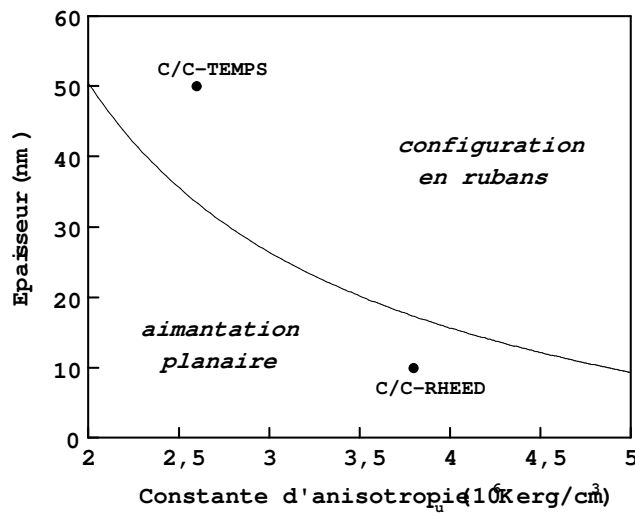


Fig. III.22 : Variation de l'épaisseur critique h_c en fonction de la constante d'anisotropie uniaxiale K_u , pour $A=6.9 \times 10^{-7}$ erg/cm et $M_s=1030$ emu/cm³ [SUK 97].

- Pour l'échantillon C/C-TEMPS et $K_u = 2.6 \times 10^6$ erg / cm³, l'épaisseur critique est évaluée à 33 nm. L'épaisseur de l'échantillon est 50 nm. Le modèle prédit l'existence d'une structure en rubans avec une composante hors du plan pour l'aimantation. Celle-ci se reflète dans la valeur du champ à saturation nécessaire pour saturer l'échantillon en parallèle : 0.3 T. Le saut à l'origine de la courbe d'aimantation traduit le retournement des parois entre rubans suivant la direction du champ magnétique appliqué. L'augmentation ultérieure du champ magnétique

s'accompagne de la diminution de l'angle entre l'aimantation et le plan de la couche mince. L'échantillon est finalement saturé pour un champ extérieur égal à 3000 Oe.

En utilisant le formalisme de Sukstanskii et Primak [SUK 97], nous pouvons proposer un profil d'aimantation de la structure en rubans de l'échantillon C/C-TEMPS d'épaisseur 50 nm (Fig. III.23). Nous trouvons qu'au centre d'un ruban, l'angle entre l'aimantation et le plan de

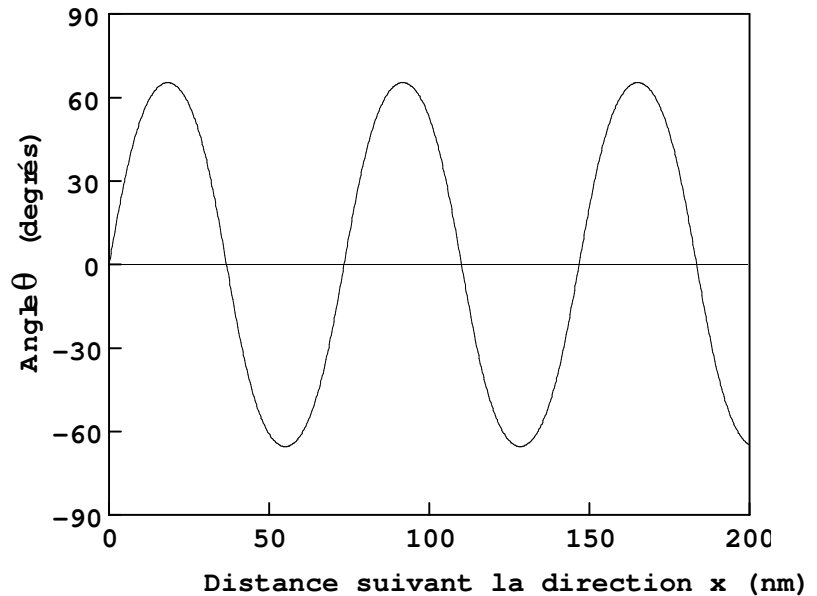


Fig. III.23 : Profil d'aimantation calculé pour l'échantillon C/C-TEMPS (épaisseur 50 nm).

la couche mince est égal à 65° et la largeur attendue pour les rubans est égale à 37 nm.

4) Mesures d'aimantation : résumé

L'étude des courbes d'aimantation révèle que seuls les échantillons C-350 ont un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan de la couche mince. Les autres échantillons ont leur axe de facile aimantation dans le plan. L'analyse quantitative des courbes d'aimantation a permis d'évaluer la constante d'anisotropie magnétique uniaxiale des différents échantillons (Table III.1). La figure III.24 résume les résultats des modèles micromagnétiques, appliqués à nos échantillons. Ces modèles envisagent la formation de domaines magnétiques dans les échantillons C-350 (largeur 64 nm pour une épaisseur de 50 nm) ainsi que dans les échantillons C/C-TEMPS, pour une épaisseur supérieure à 33 nm (la largeur des rubans est égale à 37 nm pour une épaisseur de 50 nm).

type d'échantillon	K_u (10^6 erg/cm ³)	$\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2$	épaisseur h (nm)
C-TA	0.7 (± 1)	0.11	50
C-TA/R-420	1.1 (± 1)	0.17	50
C/C-TEMPS	2.6 (± 1)	0.39	50
C/C-RHEED	3.8 (± 1)	0.57	10
C-350	10.3 (± 1)	1.55	50

Table III.1 : Constantes d'anisotropie uniaxiale K_u
évaluées à partir des courbes d'aimantation

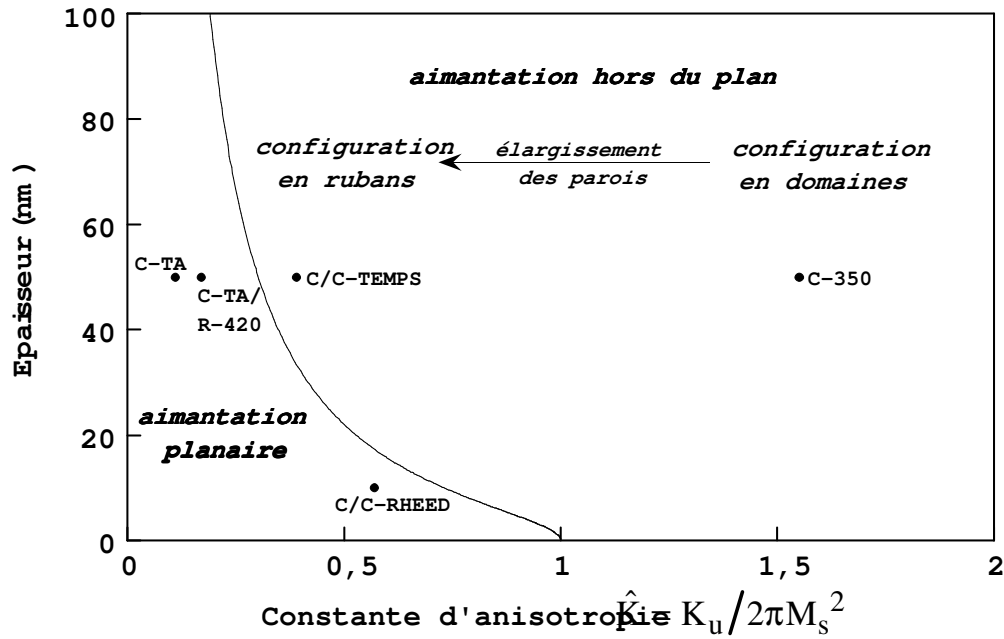


Fig. III.24 : Cette figure donne la configuration magnétique prédite par les modèles, en fonction de l'épaisseur de la couche mince et de l'anisotropie uniaxiale du matériau (pour $A = 6.9 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$ et $M_s = 1030 \text{ emu/cm}^3$). La frontière entre l'aimantation planaire et la configuration en rubans est le résultat du modèle de Sukstanskii et Primak [SUK 97]; la transition entre la configuration en rubans et celle en domaines est continue (lorsque l'anisotropie augmente, la largeur des parois se réduit progressivement). Les points représentent les couches minces d'alliage FePd élaborées suivant les différentes procédures.

C - Imagerie des domaines magnétiques par Microscopie à Force Magnétique

1) Principe

La Microscopie à Force Magnétique (MFM) fait partie des microscopies dites à “ champ proche ” : elle consiste à mesurer les forces d’interaction entre une pointe qui se déplace au dessus de la surface de l’échantillon, et la surface elle-même. La Microscopie à Force Magnétique utilise une pointe recouverte d’un matériau magnétique, qui est donc sensible au champ de fuite émanant d’un échantillon magnétique. La possibilité de visualiser par cette technique des domaines magnétiques de petite taille dans des échantillons de très faible épaisseur a été démontrée récemment [BOC 95, HEH 96a]. Nous avons utilisé des pointes en silicium recouvertes d’alliage CoCr fournies par la compagnie Digital. Le Nanoscope IIIA de Digital Instrument a été utilisé dans le mode ac : le cantilever supportant la pointe oscille à haute fréquence (typiquement 60-70 kHz) pendant qu’il se déplace au dessus de la surface de l’échantillon. Les décalages de fréquences dus aux interactions magnétiques à longue distance sont en principe proportionnels à la dérivée seconde, par rapport à la direction d’oscillation de la pointe, du champ local au centre de courbure de la pointe*. Ce mode de fonctionnement permet d’obtenir un bon rapport signal sur bruit. Cependant, la vraie structure magnétique n’est en général pas facile à retrouver. Dans le cas simple d’une aimantation perpendiculaire, les régions claires et sombres correspondent aux domaines magnétiques dans lesquels l’aimantation pointe vers l’une ou l’autre des faces de la couche mince.

Pour les faibles épaisseurs, les mesures ont été faites dans le mode “ entrelacé ” développé par Digital Instrument. Chacune des lignes qui formeront l’image finale est balayée deux fois. Lors du premier passage, effectué dans le mode “ tapping ”, la pointe touche la surface à chaque période de l’oscillation : l’interaction entre la pointe et la surface est alors dominée par les forces de contact (répulsion coulombienne) et ce passage permet de définir la topographie de la surface. La tension fournie au composant piézo-électrique qui commande le déplacement en z de l’échantillon, est asservie sur l’amplitude d’oscillation du cantilever. L’image topographique est formée par la conversion en nanomètres des tensions appliquées au composant piézo-électrique. Pour le second passage, le cantilever est levé à une hauteur de 25 à 30 nm au dessus de la surface. Cette hauteur est choisie pour optimiser la mesure. Le cantilever suit la topographie précédemment enregistrée. A cette hauteur, il est désormais sensible aux forces d’interaction à longue distance, dans notre cas les forces d’origine magnétique. L’image est formée par la phase du mouvement d’oscillations du cantilever, dont les variations sont plus rapides avec les variations du gradient de force qu’avec celles de l’amplitude.

Cependant, ce mode n’a pas pu être utilisé pour les plus petits domaines observés aux plus fortes épaisseurs. En fait, le champ créé par la pointe pendant le premier passage proche de la surface est maintenant suffisamment fort pour perturber la configuration magnétique et introduire des déplacements de parois de domaines magnétiques. A notre avis, ceci est possible en raison de la petite taille des domaines. Dans le cas des petits

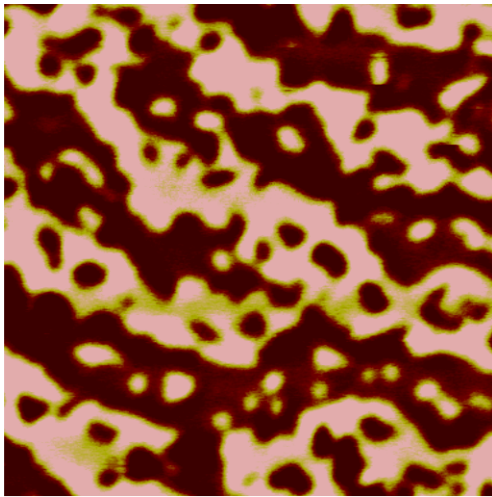
* Ce régime suppose que la pointe se comporte comme un dipole parfait. En fait, les pointes ont un comportement intermédiaire entre le dipole et le monopole magnétique [BEL 97b].

domaines magnétiques observés aux plus fortes épaisseurs, nous avons donc réalisé les mesures dans un mode complètement “ non contact “. En utilisant des valeurs de gain faibles pour la boucle de rétroaction contrôlant la hauteur de vol du cantilever et en choisissant un point de contact à la limite du décrochage, le cantilever se déplace à une hauteur presque constante pendant que les forces successivement attractives et répulsives créées par les petits domaines magnétiques changent rapidement et sont moyennées. Ce type de mesure a été possible grâce à la planéité des échantillons. La hauteur de vol peut être estimée par le déphasage de l’oscillation du cantilever et elle est similaire à celle utilisée pour l’observation des grands domaines aux faibles épaisseurs dans le mode “ entrelacé “, c’est-à-dire de l’ordre de 25 à 30 nm.

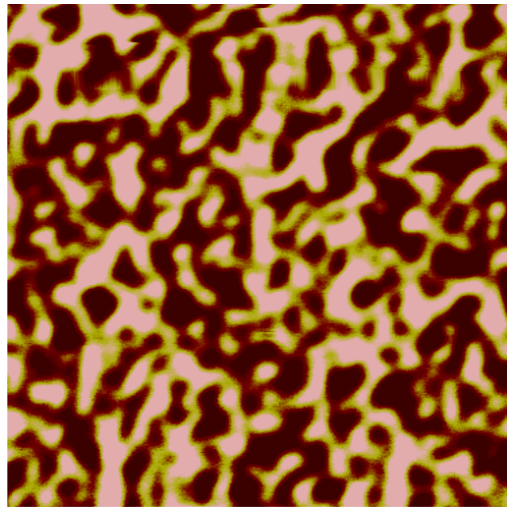
2) Codépôt à 350°C (forte anisotropie)

a) Observations

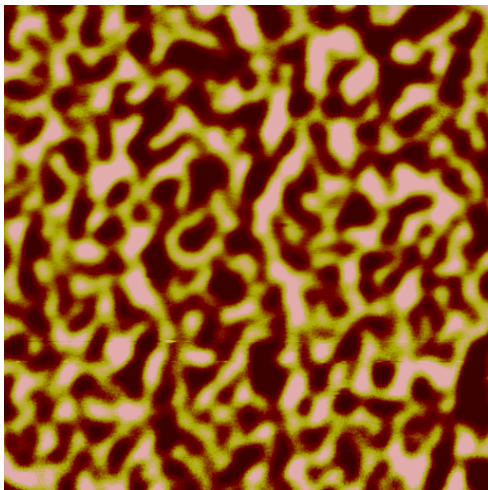
Nous avons étudié par MFM la configuration magnétique d’un échantillon codéposé à 350°C et d’épaisseur variable. Les images présentées (Fig. III.25) ont été prises avant tout traitement magnétique de l’échantillon et sans champ magnétique appliqué. Toutes les images présentées ont été enregistrées avec le même cantilever. Elles montrent que la structure magnétique varie beaucoup d’un bout à l’autre de l’échantillon d’épaisseur variable. Pour une épaisseur voisine de 50 nm, la taille des domaines magnétiques est égale à 70 nm, ce qui est proche de la valeur prédite à partir du modèle de Kaczer (64 nm).



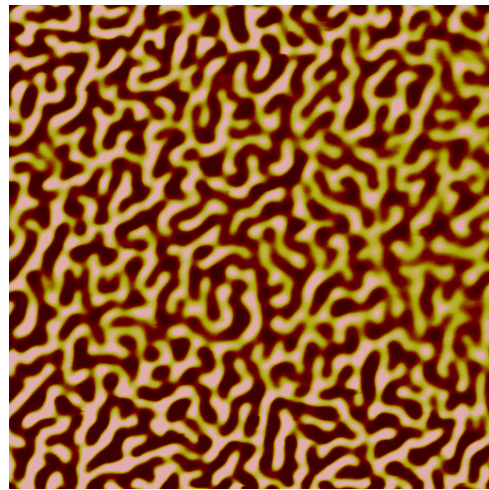
(a) épaisseur de la couche : 5.0nm



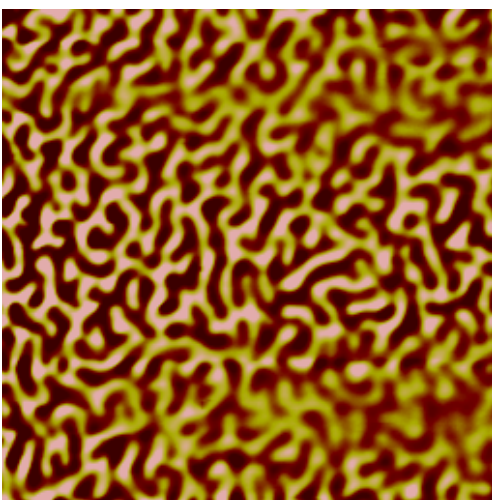
(b) épaisseur de la couche : 11.5 nm



(c) épaisseur de la couche : 14.5 nm



(d) épaisseur de la couche : 36.5 nm



(e) épaisseur de la couche 47.0 nm

Fig. III.25 : Domaines magnétiques visualisés par MFM dans l'échantillon en coin codéposé à 350°C (taille des images : $3 \times 3 \mu\text{m}$) ; l'épaisseur de la couche mince est (a) 5 nm, (b) 11.5 nm, (c) 14.5 nm, (d) 36.5 nm et (e) 47 nm. L'échantillon n'a subi aucun traitement magnétique et les images sont enregistrées sans champ extérieur appliqué.

- Evolution de la forme des domaines, en fonction de l'épaisseur de la couche mince

Aux faibles épaisseurs, la configuration magnétique est caractérisée par une double structure. Des domaines magnétiques en forme de bandes de largeur 500 à 600 nm coexistent avec des bulles plus petites de diamètre 180 nm. Dans cette configuration, la distance entre deux parois adjacentes est constante, de l'ordre du diamètre des bulles. A notre avis, cette distance est celle qui doit être prise en compte comme largeur d'équilibre des domaines magnétiques. Pour confirmer cette hypothèse, nous avons fait subir à l'échantillon un processus de désaimantation en le soumettant à un mouvement de rotation dans un champ magnétique décroissant depuis 1.7 Tesla. Ainsi, l'échantillon expérimente différentes configurations magnétiques et la structure en domaines dérive vers celle d'équilibre. La figure III.26 présente la configuration en domaines magnétiques de l'échantillon d'épaisseur 5 nm ayant subi ce procédé de désaimantation. Elle confirme que la taille d'équilibre des domaines est du même ordre de grandeur que celle des bulles magnétiques observées précédemment (Fig. III.25-a), de l'ordre de 180 nm. En conclusion, nous pensons que la configuration magnétique complexe, mélange de bandes et de bulles, résulte du processus de croissance. Les grandes bandes apparaissent en début de croissance alors que l'épaisseur de la couche est très fine et la taille d'équilibre des domaines très grande. Quand l'épaisseur augmente, la taille d'équilibre des domaines doit diminuer pour minimiser l'énergie du système. La configuration magnétique s'adapte par nucléation de domaines magnétiques plus petits en forme de bulles à l'intérieur des grands domaines en forme de bandes : ce mécanisme est vraisemblablement plus rapide que la déformation des grands domaines en forme de bandes.

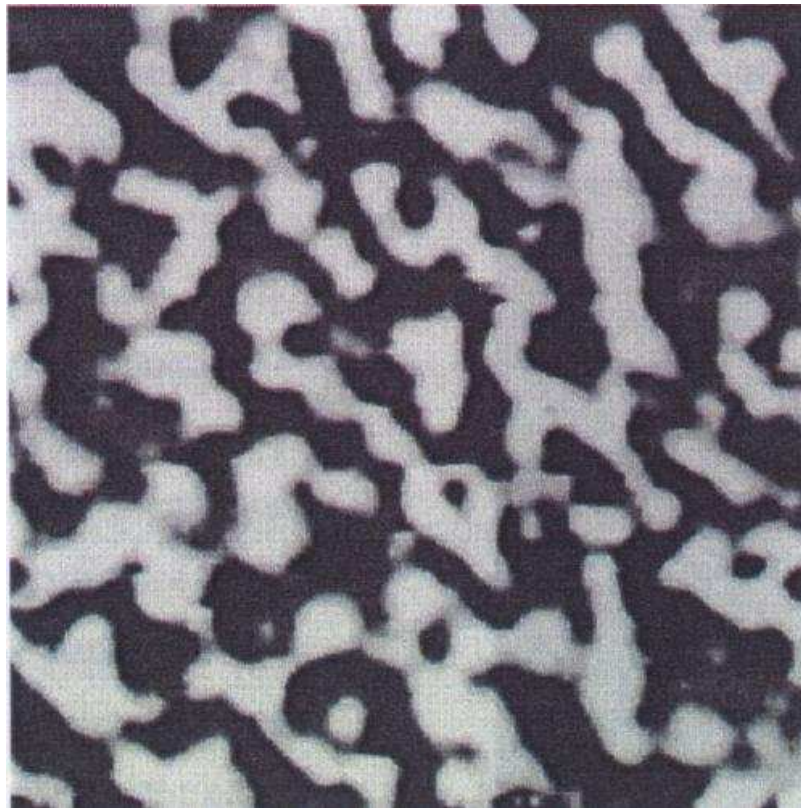


Fig. III.26 : Domaines magnétiques visualisés par MFM (taille de l'image : 3 x 3 μm) dans l'échantillon codéposé à 350°C, d'épaisseur 5 nm, après le procédé de désaimantation, sans champ extérieur appliqué.

Pour les faibles épaisseurs, nous observons donc cette configuration magnétique complexe, mélange de bandes et de bulles. Quand l'épaisseur de la couche augmente, la taille des domaines diminue. Il en résulte la fragmentation des grandes bandes. Elles sont encore visibles pour une épaisseur de 14.5 nm (Fig. III.25.b), mais elles ont complètement disparu pour les plus grandes épaisseurs. Pour les plus grandes épaisseurs étudiées, la configuration magnétique consiste en des bandes fortement interconnectées dont la largeur est bien définie : 70 nm pour un échantillon d'épaisseur 46.8 nm.

Ce comportement est similaire à celui observé dans des films Cu/Ni/Cu entre 2 nm et 12.5 nm [HUG 13]. Néanmoins, la transition de la forme des domaines de bandes à bulles puis bandes de nouveau n'a pas été observée, probablement à cause du domaine limité d'épaisseurs étudiées. Se référant au travail de Kaplan et Gehring [KAP 93], Hug et al. remarquent que la différence d'énergie entre la configuration en bandes et la configuration en échiquier est très faible : c'est la raison pour laquelle nous pouvons observer simultanément des domaines en forme de bandes et de bulles. Les modèles montrent que la taille des domaines évolue, en fonction de l'épaisseur, de la même manière quelle que soit leur forme, ce qui simplifie l'analyse.

- Evolution de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince

La figure III.27 représente la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. La taille des domaines a été mesurée sur différentes parties de plusieurs images, prises à différentes épaisseurs et nous avons représenté la valeur moyenne de ces données. Les barres d'erreur ont été déduites de l'écart type de ces mesures. Quand une configuration en bandes est clairement observée, la taille des domaines correspond à la demi-période de la configuration, mesurée en des endroits où les bandes sont localement parallèles. Il est clair que les images ne représentent pas la configuration d'équilibre du système, qui est celle constituée de domaines magnétiques en forme de bandes rectilignes parallèles [KAP 93]. Cependant, la taille mesurée doit être proche de la taille d'équilibre car l'énergie de la configuration augmente rapidement avec des petits changements d'épaisseur. Pour les faibles épaisseurs, la valeur reportée comme la taille des domaines correspond à la distance entre deux parois. Cette distance est proche de celle d'équilibre comme il a été discuté plus haut et comme le montre l'image III.26 de l'échantillon ayant été soumis à un processus de désaimantation. Cependant, nous remarquons une grande dispersion dans les tailles de domaine pour ces faibles épaisseurs. En fait, le minimum d'énergie de la configuration en domaines en fonction de la taille des domaines est moins prononcé que pour les plus fortes épaisseurs : un large domaine de taille est facilement accessible. De plus, pour les faibles épaisseurs, les domaines peuvent être considérés comme infinis par rapport à l'épaisseur. En conséquence, bien que la taille moyenne des domaines soit proche de la taille d'équilibre, des considérations cinétiques liées au processus de croissance peuvent expliquer les fluctuations locales dans les tailles de domaines.

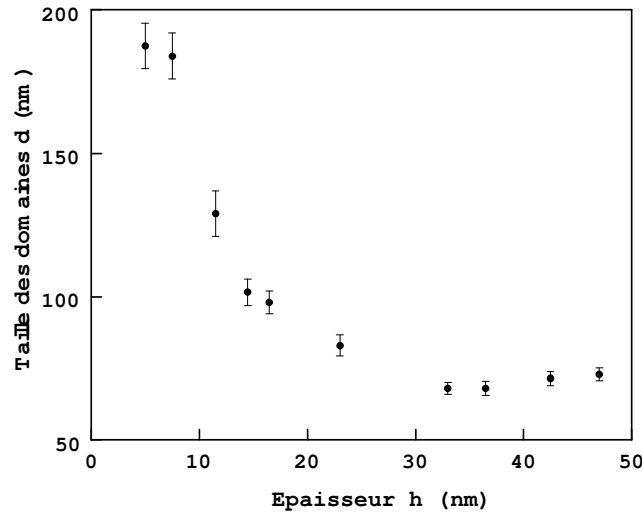


Fig. III.27 : Taille des domaines magnétiques (d), mesurée sur les images MFM, en fonction de l'épaisseur (h) de la couche mince C-350.

Sur la figure III.27, le minimum de la taille des domaines est observé pour une couche mince d'épaisseur voisine de 35 nm et pour cette épaisseur, la taille des domaines est proche de 60 nm. A partir de ce minimum, la taille des domaines augmente lentement vers les plus grandes épaisseurs, alors que l'augmentation est très prononcée vers les plus faibles épaisseurs.

b) Analyse de la taille des domaines

L'analyse effectuée pour la variation de la susceptibilité en fonction de l'épaisseur (h) de la couche mince est reproduite ici pour la taille (d) des domaines. Nous montrons dans l'annexe 5, à partir des modèles d'équilibre, que le logarithme du rapport d/h suit un comportement linéaire en fonction de $1/h$:

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(\pi) - 1 + \mu \left(\frac{1}{2} - \ln(2) \right) \quad \text{pour } d/h > 1.5 \quad (\text{formule III.14})$$

Sur la figure III.28, nous avons représenté $\ln(d/h)$ en fonction de $1/h$. Les points aux plus faibles épaisseurs ont été exclus pour les raisons exprimées plus haut. Pour les épaisseurs considérées, variant de 16 à 46.8 nm, nous sommes dans le domaine d'application du modèle puisque $d/h > 1.5$. Les points expérimentaux sont correctement ajustés par une droite dont la pente est $D_0=19$ nm, ce qui est en bon accord avec la valeur déduite indépendamment des mesures de susceptibilité (16 nm). Nous avons ainsi montré que les mesures MFM peuvent être utilisées quantitativement pour évaluer, par une analyse simple de la taille des domaines, l'énergie de paroi entre domaines magnétiques.

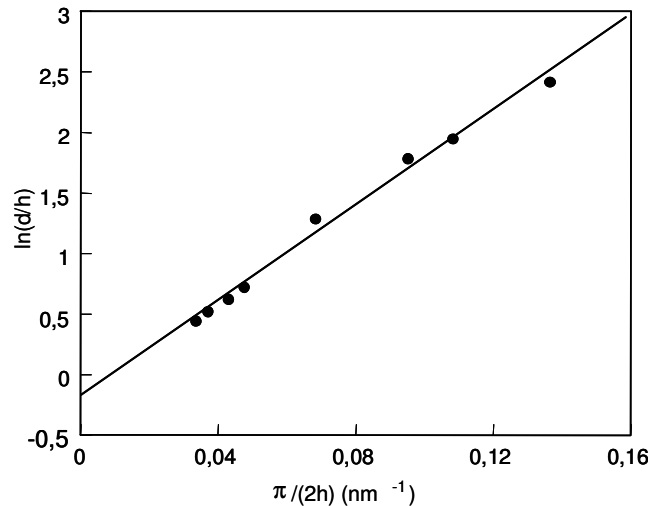


Fig. III.28 : $\ln(d/h)$ en fonction de $1/h$.

(d est la taille des domaines magnétiques et h est l'épaisseur de la couche mince C-350)

Comme il a été noté auparavant avec les mesures de susceptibilité, l'ordonnée à l'origine ($b = -0.184$) est liée à la valeur du paramètre μ par la relation :

$$b = \ln(\pi) - 1 + \mu(1/2 - \ln(2)), \quad \text{III.32}$$

Notons que contrairement à la valeur de la pente, qui est indépendante de la configuration magnétique exacte (bandes ou échiquier), l'ordonnée à l'origine dépend de cette configuration [KAP 93]. La relation III.32 est valable seulement dans le cas de domaines magnétiques en forme de bandes parallèles.

Comme la valeur du préfacteur de μ est petite : $(1/2 - \ln(2)) \approx -0.19$, nous ne pouvons pas compter sur la formule III.32 pour obtenir une valeur fiable du paramètre μ . Par contre, en introduisant dans la formule III.32 la valeur de μ ($\mu=1.65$) obtenue par l'analyse de l'aire entre les courbes d'aimantation en champ parallèle et perpendiculaire, nous obtenons la valeur de l'ordonnée à l'origine : $b = -0.174$. Cette valeur est très proche de la valeur expérimentale. Il n'est pas surprenant de retrouver expérimentalement la valeur de l'ordonnée à l'origine correspondant à des domaines magnétiques en forme de bandes, puisque les images prises en compte pour la présente analyse de la taille des domaines correspondent toutes à des domaines magnétiques en forme de bandes (les images aux plus faibles épaisseurs ont été rejetées).

3) Dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps (faible anisotropie)

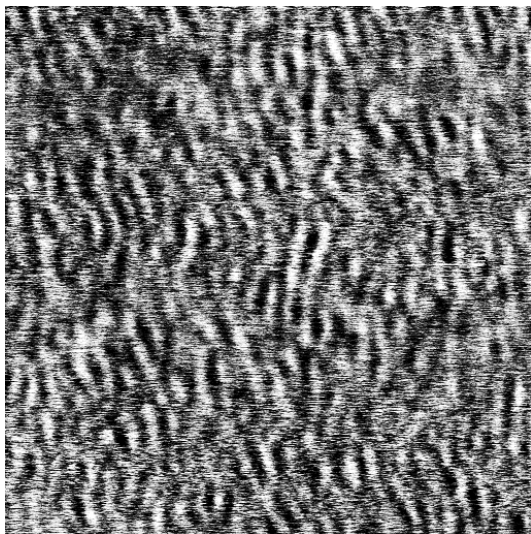
a) Observations

Pour étudier la variation de la largeur des rubans en fonction de l'épaisseur, nous avons utilisé un échantillon à gradient d'épaisseur. En déplaçant le cache motorisé à vitesse constante devant l'échantillon pendant le dépôt, nous avons obtenu un échantillon de longueur 15 mm dont l'épaisseur varie linéairement de 0 à 50 nm. Nous avons découpé cet échantillon à la scie à fil en 5 morceaux de surface égale (15 mm^2) puis mesuré les

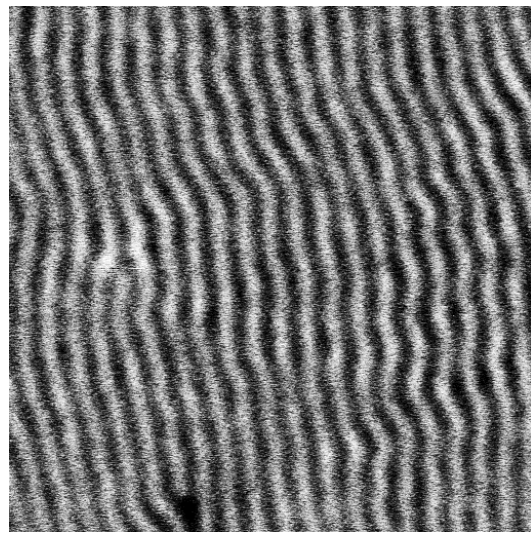
courbes d'aimantation de ces morceaux séparément au VSM ou au magnétomètre Kerr polaire. Les cycles montrent que l'axe de facile aimantation est dans le plan des couches, quelle que soit l'épaisseur de la couche mince. La constante d'anisotropie, mesurée par la méthode des aires entre les courbes d'aimantation en champ parallèle et perpendiculaire, est égale pour l'échantillon d'épaisseur 50 nm et l'échantillon à gradient d'épaisseur (pour lequel elle est indépendante de l'épaisseur) : $K_u = 2.6(\pm 1) \times 10^6 \text{ erg / cm}^3$. Nous rappelons que le modèle de Sukstanskii et Primak [SUK 97] prédit une structure en rubans pour cette valeur d'anisotropie, au delà de l'épaisseur critique $e_c = 33 \text{ nm}$.

Expérimentalement, l'épaisseur critique a pu être évaluée à partir des observations MFM à 27 nm. Nous présentons les images MFM obtenues sur l'échantillon C/C-TEMPS à gradient d'épaisseur (Fig. III.29). Pour les faibles épaisseurs, inférieures à 27 nm, nous n'avons obtenu aucun contraste d'origine magnétique : l'aimantation est dans le plan de la couche mince. Les images MFM correspondant à une épaisseur supérieure à 27 nm révèlent l'existence d'une composante périodique de l'aimantation hors du plan. Cette configuration magnétique correspond à la structure en rubans initialement décrite par Kaczer [KAC 63]. La valeur expérimentale de l'épaisseur critique est proche de la valeur calculée par le modèle de Sukstanskii et Primak : 33 nm [SUK 97].

Pour une épaisseur juste supérieure à l'épaisseur critique, la largeur des rubans est égale à 37 nm. A notre connaissance, il s'agit de la plus petite taille de domaines ayant pu être observée à ce jour.



(a) épaisseur de la couche : 27 nm



(b) épaisseur de la couche : 45 nm

Fig. III.29 : Images MFM (taille : $2 \times 2 \mu\text{m}$) de la couche mince C/C-TEMPS à gradient d'épaisseur. Les épaisseurs sont égales (a) 27 nm et (b) 45 nm. L'échantillon n'a subi aucun traitement magnétique et l'image est enregistrée sans champ extérieur appliqué.

b) Largeur des rubans en fonction de l'épaisseur

Pour des épaisseurs supérieures à 27 nm, la largeur des rubans augmente avec l'épaisseur (Fig. III.30). Pour une épaisseur donnée, elle est supérieure à celle prédite par le modèle de Sukstanskii et Primak [SUK 97] : par exemple, pour une couche d'épaisseur

50 nm, la largeur des rubans est égale à 60 nm, alors que la largeur calculée est égale à 33 nm. Nous rappelons que le modèle de Sukstanskii et Primak suppose que la direction de l'aimantation est uniforme suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche mince. Nous pensons que l'écart entre la largeur mesurée et la largeur calculée peut s'expliquer par la présence de domaines de fermeture, dans cet échantillon où l'anisotropie est faible ($\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2 \approx 0.4$).

La variation de la largeur (d) des rubans en fonction de l'épaisseur (h) de la couche mince peut-être ajustée par une fonction puissance. En laissant libre le coefficient et l'exposant lors de l'ajustement, nous trouvons que l'exposant est proche de 1/2 : $d = 5.44 \times h^{0.57}$ (pour d et h exprimés en nanomètres).

Ce comportement rappelle le modèle de Murayama [MUR 66] qui, en tenant compte de la présence des domaines de fermeture, montre que la variation de la taille des rubans en fonction de l'épaisseur est de la forme : $d = C\sqrt{h}$, où C est une constante dépendant des paramètres K_u , A et M_s (formule III.29). En introduisant la valeur de la constante d'anisotropie uniaxiale mesurée par les aires entre les courbes d'aimantation ($K_u = 2.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$) et la constante d'échange ($A = 6.9 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$), nous trouvons : $C=6.18$. Ce coefficient est très proche de la valeur expérimentale, ce qui semble confirmer la validité du modèle de Murayama, ainsi que l'existence de domaines de fermeture dans l'échantillon.

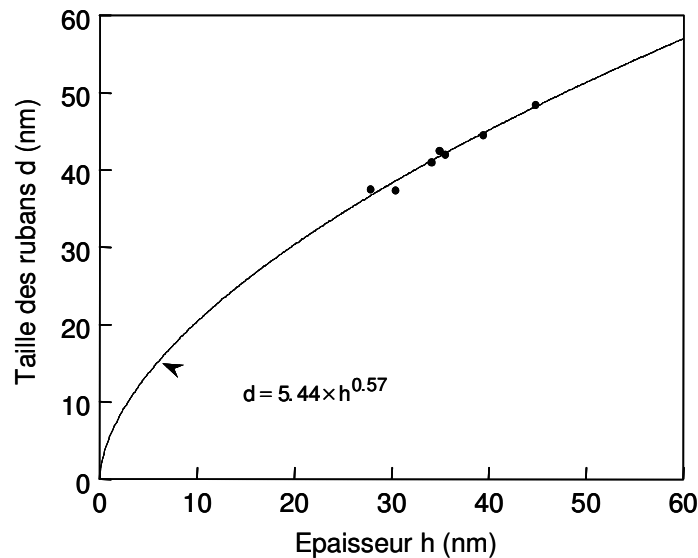


Fig. III.30 : Largeur des rubans (d) mesurée sur les images MFM, en fonction de l'épaisseur (h) de la couche mince C/C-TEMPS.

c) Direction d'alignement des rubans

- Echantillon à gradient d'épaisseur (0 nm à 50 nm)

Les images présentées ont été enregistrées sur l'échantillon n'ayant subi aucun traitement magnétique après croissance et aucun champ magnétique n'est appliqué pendant l'observation. L'alignement des rubans est remarquable et nous pensons qu'il résulte de la croissance : aux faibles épaisseurs, l'aimantation est dans le plan de la couche mince, alignée suivant la direction [100] par exemple, dans le cas de cet échantillon ; au delà d'une épaisseur critique, l'aimantation acquiert une composante hors du plan, et il se

créé une structure en rubans. La composante de l'aimantation dans le plan n'est pas modifiée. En conséquence, la configuration magnétique est constituée de rubans rectilignes et parallèles à la direction de facile aimantation sur laquelle était alignée l'aimantation au début de la croissance. La direction [100] ne constitue pourtant pas une direction de facile aimantation pour cet échantillon : les courbes d'aimantation, mesurées en appliquant un champ suivant différentes directions dans le plan de la couche mince, sont toutes équivalentes et après application d'un champ suivant une direction quelconque dans le plan de la couche mince, l'observation MFM montre que la structure en rubans reste alignée sur la direction du dernier champ appliqué. Cet échantillon ne présente pas d'anisotropie planaire significative.

- Echantillon d'épaisseur 50 nm

Nous présentons l'image MFM de l'échantillon C/C-TEMPS, d'épaisseur 50 nm (Fig. III.31). La période des rubans est identique à celle mesurée sur l'échantillon à gradient d'épaisseur, pour une épaisseur équivalente. Cependant, dans le cas de l'échantillon d'épaisseur 50 nm, les images MFM ainsi que les courbes d'aimantation mesurées avec un champ magnétique appliqué suivant différentes directions dans le plan de la couche mince révèlent une anisotropie planaire uniaxiale : la direction de facile aimantation dans le plan est l'axe orienté à environ 26° de la direction cristallographique [110] et l'énergie d'anisotropie correspondante est équivalente à 200 Oe.

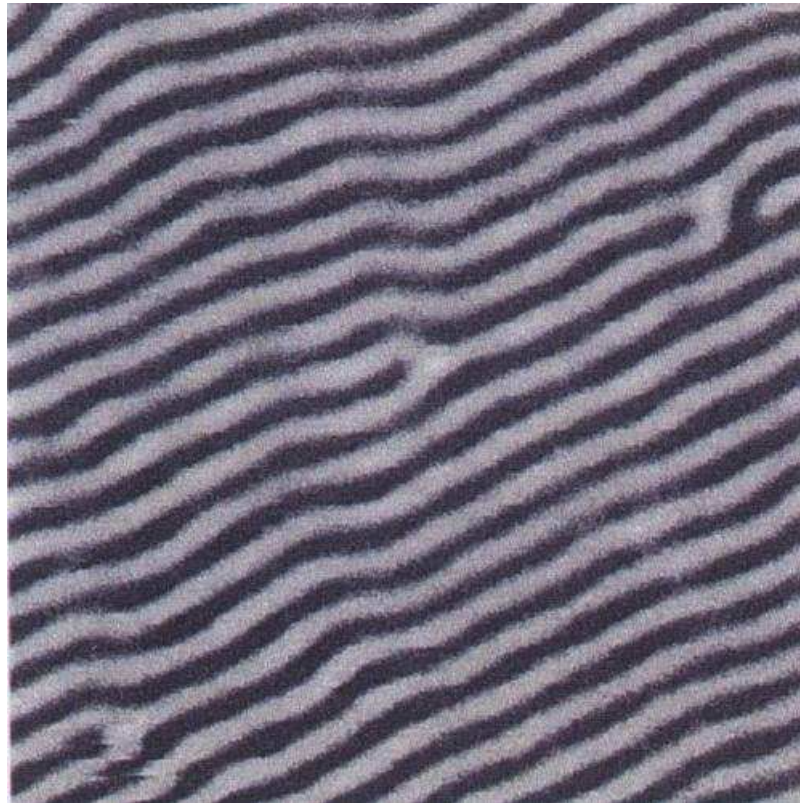


Fig. III.31 : Image MFM (taille : $2 \times 2 \mu\text{m}$) de la couche mince C/C-TEMPS d'épaisseur 50 nm. L'échantillon n'a subi aucun traitement magnétique et la mesure est effectuée sans champ extérieur appliqué.

- Origines possibles de l'anisotropie planaire

A travers la littérature, nous avons relevé trois sources possibles d'anisotropie planaire.

- Tout d'abord, il faut tenir compte de l'anisotropie magnéto-cristalline cubique de l'alliage FePd : dans l'alliage massif désordonné, la direction de facile aimantation est l'axe [111] [MIY 86a, MIY 86b]. Il en résulte une anisotropie planaire d'ordre 4 dans le plan d'une couche mince, les directions de type $\langle 110 \rangle$ étant des axes de facile aimantation .

- Un deuxième paramètre à prendre en compte pour interpréter l'anisotropie planaire est la direction incidente des flux de matière Fe et Pd en cours de croissance. Durand et al. [DUR 95] ont en effet observé une anisotropie planaire uniaxiale liée à la direction incidente des flux : l'axe [100] parallèle à la direction incidente des flux est un axe de difficile aimantation. Dans notre cas, la direction des flux incidents était de 10° par rapport à la direction [100].

- Enfin, un troisième paramètre important est la désorientation de la surface du substrat par rapport à la direction cristallographique [001]. Weber et al. [WEB 96] ont étudié le dépôt de fines couches de cobalt sur des substrats de cuivre désorientés, ayant des marches préférentiellement orientées suivant la direction [110]. Ils ont montré qu'une désorientation aussi faible que 0.1° peut donner naissance à une anisotropie planaire uniaxiale dans les films de cobalt. Dans notre cas, la désorientation du substrat MgO est de l'ordre de 0.1° et sa direction varie d'un échantillon à l'autre.

La diversité des paramètres à prendre en compte pour interpréter l'anisotropie planaire des couches minces d'alliage FePd explique que nous n'ayons pas observé de comportement systématique d'un échantillon à l'autre, en ce qui concerne l'anisotropie planaire.

4) Domaines magnétiques : résumé

L'étude par Microscopie à Force Magnétique a permis de visualiser les domaines magnétiques dans les couches minces d'alliage FePd à aimantation perpendiculaire, c'est-à-dire les échantillons C-350 d'épaisseur variant entre 5 et 50 nm, et C/C-TEMPS d'épaisseur supérieure à 27 nm.

- Pour l'échantillon C-350, l'analyse quantitative de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur de la couche mince donne une mesure de la longueur dipolaire D_0 , paramètre caractéristique du matériau : $D_0=19$ nm. Cette valeur est en bon accord avec celle déduite indépendamment de l'analyse des courbes d'aimantation ($D_0=16$ nm).

- Pour l'échantillon C/C-TEMPS, l'épaisseur critique est proche de la valeur calculée par le modèle de Sukstanskii et Primak (33 nm). La largeur des rubans en fonction de l'épaisseur de la couche mince suit une loi en racine carrée, conformément au modèle de Murayama. Des domaines de fermeture sont susceptibles de se développer dans cet échantillon où l'anisotropie perpendiculaire est faible.

D - Spectroscopie Mössbauer

La spectroscopie Mössbauer permet d'étudier, à l'aide de l'absorption résonnante de rayons γ , certaines propriétés physico-chimiques des atomes qui composent un solide. Nous avons pu appliquer cette technique avec succès au cas des couches minces d'alliage FePd pour sonder l'état d'aimantation des atomes de fer.

1) Principe

L'effet Mössbauer peut être défini comme l'absorption résonnante, sans recul, de rayons γ par les noyaux d'un solide : les photons γ émis par la source ont exactement l'énergie qui sépare les 2 niveaux d'énergie des états fondamental et excité du noyau de l'atome absorbeur à étudier. Dans le cas de notre expérience, la source radioactive est du ^{57}Co qui se transforme en un noyau de ^{57}Fe . Ce rayonnement est reçu par l'échantillon et les atomes de ^{57}Fe présents dans la couche mince d'alliage FePd participent à un processus d'absorption résonnante dans certaines conditions. En effet, les niveaux d'énergie des noyaux ^{57}Fe contenus dans l'alliage FePd sont perturbés par les champs électriques et magnétiques existant dans le matériau. Il faut donc faire un balayage en énergie des photons γ pour exciter une résonance. Pour cela, la source est soumise à un mouvement de translation : l'énergie du rayonnement est modifiée par effet Doppler. L'analyse de l'absorption résonnante peut être faite en détectant les photons γ transmis à travers l'échantillon, en fonction de la vitesse de déplacement de la source : on obtient ainsi des spectres d'absorption. Dans le cas des couches minces où les substrats sont épais, les rayons γ non résonnants ne peuvent pas traverser l'échantillon, on analyse alors les électrons émis. En effet, après avoir absorbé de manière résonnante un photon, le noyau Mössbauer retombe dans son état fondamental. Il y a alors, soit émission d'un photon qui va sortir de l'atome (1/10 des cas), soit éjection d'un électron des couches K (très majoritaires), L ou M de l'atome de fer, suivie de l'émission d'électrons Auger dits secondaires. Ces électrons doivent sortir de l'échantillon pour être détectés (par un channeltron dans notre cas). Pour fixer les idées, le libre parcours moyen des électrons K dans le fer est d'environ 100 nm. Le spectre obtenu est un spectre d'électrons émis en fonction de la vitesse de déplacement de la source. Ses caractéristiques dépendent des perturbations des niveaux nucléaires appelées "interactions hyperfines". Si la source et l'absorbeur sont identiques, on aura une seule raie centrée sur la vitesse nulle, qui correspond dans le cas du fer à une énergie de 14.4 keV. S'il existe un gradient de champ électrique au niveau des noyaux de fer de l'échantillon, une structure en doublet sera observée. Enfin, dans le cas d'atomes magnétiques, la présence d'un champ hyperfin conduit à l'apparition d'un sextuplet.

Plusieurs paramètres peuvent être extraits d'un spectre Mössbauer. Le déplacement isomérique (DI), proportionnel à la densité électronique au noyau, permet d'étudier les problèmes d'hybridation et de liaison des atomes de fer. Le déplacement quadropolaire (SQ) correspond à l'énergie d'interaction électrique entre le noyau et son environnement ; il dépend de la répartition des charges à l'extérieur du noyau et il est sensible aux problèmes de symétrie de l'environnement. Le champ hyperfin (H_{hf}) donne des informations sur l'amplitude des moments magnétiques. Enfin, l'intensité relative des raies d'un spectre d'un matériau magnétique indique l'orientation de ces moments.

L'effet Mössbauer permet de détecter de très faibles déplacements des niveaux énergétiques nucléaires induits par les modifications d'environnement. C'est une méthode d'analyse sélective qui permet, dans notre cas, de sonder l'état d'aimantation des atomes Fe dans les couches minces d'alliage FePd. La difficulté expérimentale à laquelle nous avons été confrontés est la faible teneur en atomes ^{57}Fe de nos échantillons : pour une couche mince d'alliage $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ d'épaisseur 50 nm élaborée à partir d'une charge de fer massif dont la teneur naturelle en atomes ^{57}Fe est seulement 2.2%, il s'agit de mesurer le signal Mössbauer provenant de l'équivalent de 2 monocouches de fer. Pour améliorer la statistique de mesure, nous avons utilisé de très longs temps d'accumulation des données, en général plusieurs semaines. De plus, comme le signal détecté est formé par les électrons issus du processus de désexcitation, la mesure est réalisée sans champ magnétique extérieur.

L'analyse est faite par simulation numérique, à l'aide d'un programme mis au point par G. Czjzek (Karlsruhe, Allemagne) et T. Tomala (Cracovie, Pologne). Ce programme diagonalise l'hamiltonien complet (interactions quadrupolaire et magnétique) et fournit les énergies et les intensités des raies de transition. Ces dernières sont représentées par des fonctions lorentziennes. Le spectre simulé est ajusté au spectre expérimental par la méthode des moindres carrés.

Dans les structures complexes ou désordonnées, l'environnement change d'un site de fer à l'autre. Les spectres présentent un élargissement des raies qui peuvent se recouvrir, entraînant un manque de résolution du spectre. Dans ce cas, une juxtaposition de spectres élémentaires est introduite. Il en résulte une distribution des paramètres hyperfins H_{hf} , DI et SQ, ce qui permet de tenir compte de la variété d'environnements topologiques et chimiques autour des atomes sondés de ^{57}Fe .

A la suite de cet ajustement, nous proposons une distribution en champ hyperfin et direction de l'aimantation, à partir de laquelle le spectre calculé est le plus proche du spectre expérimental. La direction de l'aimantation est définie par l'angle α entre le vecteur aimantation et le faisceau de rayons γ incidents, parallèle à la direction normale au plan de la couche mince. L'angle α est calculé à partir des intensités relatives des raies d'un sextuplet, qui s'écrivent dans le cas général : $\langle\langle 3, y, 1, 1, y, 3 \rangle\rangle$. L'angle α est donné par la relation :

$$\sin^2 \alpha = \frac{2y}{4+y} \quad \text{III.33}$$

Le déplacement quadrupolaire dépend de l'angle θ entre la direction du champ interne et l'axe de symétrie quaternaire local :

$$\text{SQ} = \frac{e^2 q Q}{2} (3 \cos^2 \theta - 1) \quad \text{III.34}$$

où e est la charge de l'électron, q est le gradient de champ électrique au niveau du noyau et Q est le moment quadrupolaire du noyau.

Notons que dans le cas de la mise en ordre des couches minces d'alliage FePd, l'axe de symétrie quaternaire local est parallèle à la direction du faisceau de rayons γ incidents, donc les angles θ et α sont confondus.

La sensibilité au paramètre $e^2 q Q / 2$ dépend donc de la direction de l'aimantation dans la couche mince, par l'intermédiaire du facteur $(3 \cos^2 \theta - 1)$. La sensibilité est la plus grande pour $\theta=0$, c'est-à-dire lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince (le facteur vaut 2). La sensibilité est plus faible lorsque $\theta = \pi/2$, c'est-à-dire lorsque l'aimantation est dans le plan de la couche mince (le facteur vaut -1). Avec

une distribution isotrope de l'aimantation dans la couche mince, ou pour une direction d'aimantation telle que $\theta=54^\circ$, la valeur moyenne du facteur est nulle, et nous ne pouvons pas extraire la valeur du paramètre $e^2qQ/2$.

2) Mesures et interprétation

Nous avons effectué les mesures de spectroscopie Mössbauer sur 4 échantillons :

- C-TA : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante)
- C-350 : épaisseur 10 nm (codéposition à 350°C)
- C-350 : épaisseur 50 nm (codéposition à 350°C)
- C/C-TEMPS : épaisseur 50 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt)

Un tableau récapitulatif des paramètres Mössbauer des différents échantillons est présenté à la fin de cette partie, au paragraphe III.D.2.e (Table III.2).

a) Couche mince codéposée température ambiante (C-TA), d'épaisseur 50 nm

La figure III.32-a représente le spectre Mössbauer, mesuré à 300 K, sur l'échantillon C-TA, d'épaisseur 50 nm. Les points correspondent aux données expérimentales ; le trait continu correspond au spectre théorique ajusté sur les points expérimentaux. Il a été calculé avec la distribution en champ hyperfin reproduite sur la figure III.32-b. Cette expérience confirme que l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche mince ($\alpha=90^\circ$). La distribution en champ hyperfin est très large, centrée sur $H_{hf}^{dés}=343$ kOe à 300 K. La mesure effectuée à 20 K donne une distribution centrée sur 368 kOe.

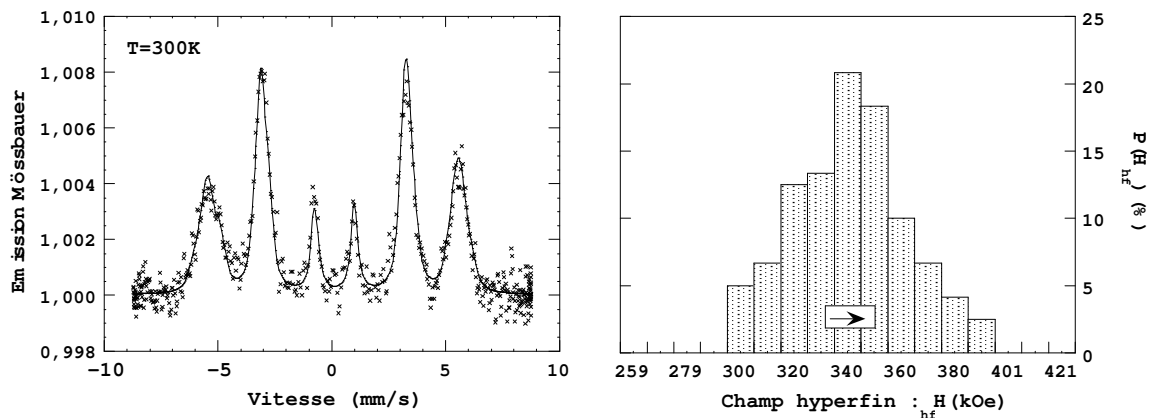


Fig. III.32 : a- Spectre Mössbauer pour l'échantillon C-TA d'épaisseur 50 nm et b- distribution en champ hyperfin.

Le spectre obtenu ressemble à ceux publiés par Longworth [LON 68] et Tsurin et al. [TSU 76a], pour des alliages FePd désordonnés massifs. Les valeurs de champs hyperfins reportées dans ces études, pour l'alliage $Fe_{50}Pd_{50}$, sont 320 kOe à 300 K et 350 kOe à basse température (extrapolation à 0 K). Nos valeurs sont donc plus élevées, et nous pensons que l'écart résulte de la tendance à l'homocoordination, qui a été mise en

évidence par l'expérience EXAFS dans l'échantillon C-TA (Table II.6) : la concentration en atomes Fe situés sur la première sphère de coordination est égale à 70%, pour une concentration moyenne de l'alliage égale à 50%. Tsurin et al. [TSU 76a] ont étudié une série d'alliage FePd de différentes compositions. Ils ont pu expliquer la dépendance du champ hyperfin en fonction du nombre de premiers voisins d'atomes Fe, en attribuant un apport au champ hyperfin, égal 16 kOe par atome Fe situé sur la première sphère de coordination. Dans notre cas, le champ hyperfin moyen, égal à 343 kOe, semble effectivement être relié à la concentration en atomes Fe dans la première sphère de coordination, puisque la valeur que nous mesurons est proche du champ hyperfin de l'alliage désordonné Fe₇₅Pd₂₅ déterminée par Tsurin et al. [TSU 76a], égal à 350 kOe.

Par la suite, nous noterons $H_{hf}^{dés}$ le champ hyperfin moyen de l'échantillon C-TA, qui correspond à des atomes Fe dans un environnement désordonné, avec 8.34 premiers voisins de fer :

$$H_{hf}^{dés}=343 \text{ kOe}$$

Outre l'augmentation du champ hyperfin moyen, la tendance à l'homocoordination explique par ailleurs le fait que la distribution de champs hyperfins soit large : d'un site à l'autre, suivant que les atomes Fe sont au centre d'un amas de fer ou sur les bords, le nombre d'atomes Fe voisins varie, conduisant à des différences de champs hyperfins.

Le déplacement quadrupolaire est trouvé nul dans cet échantillon, comme pour des sites parfaitement isotropes. Pourtant, l'expérience de diffraction de rayons X et l'expérience EXAFS ont mis en évidence la déformation tétragonale du réseau cristallin. Cette déformation ne donne pas lieu à un déplacement quadrupolaire, à cause du désordre chimique : en moyenne sur tous les sites, le déplacement quadrupolaire est nul. Dans l'échantillon ordonné présenté ci-après, les atomes Fe ont un environnement anisotrope du point de vue de la nature des proches voisins, et cet environnement est identique d'un site à l'autre : le déplacement quadrupolaire est alors différent de 0.

b) Couche mince codéposée à 350°C (C-350), d'épaisseur 10 nm

Nous avons dû envisager une distribution de champs hyperfins très étendue pour analyser le spectre de l'échantillon codéposé à 350°C et d'épaisseur 10 nm, étudié à 300 K (Fig. III.33). La contribution dominante (84%) se situe autour d'un champ hyperfin moyen égal à 281 kOe. La reste de la distribution s'étale pour les champs hyperfins plus grands, jusqu'à 420 kOe. Tous les moments sont perpendiculaires au plan de la couche mince ($\alpha=0^\circ$) : cette expérience confirme l'anisotropie perpendiculaire des couches minces d'alliage FePd codéposées à 350°C.

- Interprétation de la valeur moyenne du champ hyperfin

L'étude structurale a montré que le degré d'ordre, à courte et à longue distance, est élevé dans cet échantillon (Table II.2 et II.7). Nous pensons que la contribution principale (84%), centrée sur un champ hyperfin moyen de 281 kOe, correspond aux atomes Fe dans un environnement ordonné. Cette interprétation est appuyée par la valeur du déplacement quadrupolaire ($\langle e^2qQ/2 \rangle = 0.38 \text{ mm/s}$, $\theta = 0^\circ$) qui révèle la symétrie tétragonale de ces sites. Comme dans le cas de l'échantillon C-TA, nous ne pouvons pas

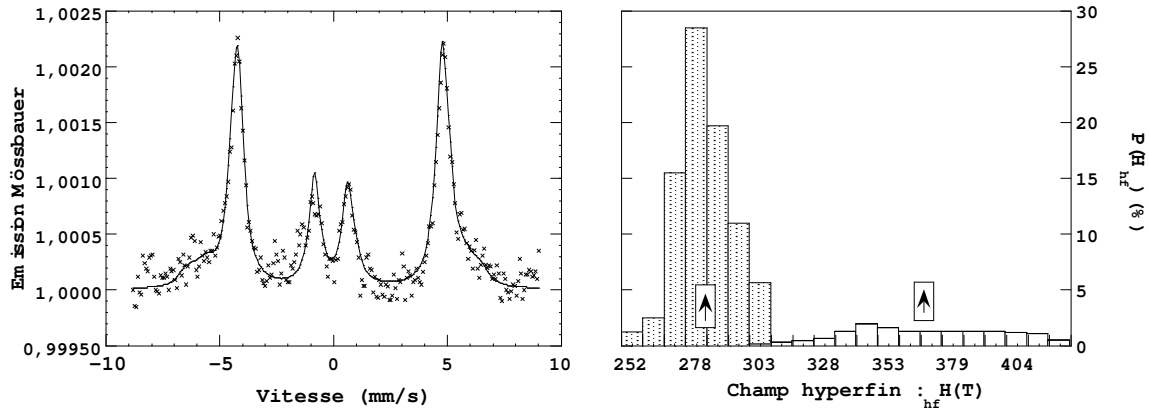


Fig. III.33 : a- spectre Mössbauer pour l'échantillon C-350 d'épaisseur 10 nm et b- distribution en champ hyperfin.

comparer la valeur du champ hyperfin à celle de la littérature concernant l'alliage Fe₅₀Pd₅₀ ordonné, car il faut tenir compte de l'ordre chimique local. Dans la phase ordonnée Fe₅₀Pd₅₀, le nombre de premiers voisins Fe est égal à 4, alors que l'analyse EXAFS a montré que dans l'échantillon C-350, ce nombre est égal à 6.45.

Pour comprendre la valeur mesurée du champ hyperfin, nous reprenons l'analyse en terme de premiers voisins. Par la mesure EXAFS, nous avons montré que le nombre de premiers voisins de fer est égal à 6.45 dans l'échantillon C-350, contre 8.34 pour l'échantillon C-TA (pour lequel $H_{hf}^{dés}=343$ kOe), soit une différence égale à 1.89 atomes Fe. En attribuant un apport égal 16 kOe par atome Fe situé sur la première sphère de coordination [TSU 76a], nous en déduisons la valeur de la partie isotrope du champ hyperfin attendue pour l'échantillon C-350 : $H_{hf}^{ord}=H_{hf}^{dés}-16 \times 1.89=313$ kOe.

$$H_{hf}^{ord}=313 \text{ kOe}$$

La valeur du champ hyperfin mesurée pour l'échantillon C-350 (281 kOe) est inférieure à ce résultat. Nous pensons que la différence provient d'une anisotropie du champ hyperfin : Gros et Paulevé [GRO 70] ont montré que dans un alliage FeNi ordonné dans la structure L1₀, le champ hyperfin varie en fonction de l'angle θ entre l'aimantation et l'axe de tétragonalité de la structure (c'est-à-dire l'axe c). Cette anisotropie est due à ce que, dans la structure ordonnée, les atomes Fe ne se trouvent plus dans une symétrie cubique. Les différents termes anisotropes de l'opérateur champ magnétique, à l'emplacement du noyau, sont le champ dipolaire créé par les moments magnétiques des atomes voisins (équivalent au champ démagnétisant macroscopique), le champ dipolaire créé par les électrons de l'atome considéré, et le champ créé par la composante orbitale résiduelle du moment magnétique des électrons de l'atome considéré. Gros et Paulevé [GRO 70] montrent que c'est la contribution dipolaire des électrons qui est dominante.

La variation du champ hyperfin en fonction de l'angle θ entre l'aimantation et l'axe de tétragonalité de la structure (c'est-à-dire l'axe c) s'exprime par la relation [GRO 70] :

$$H_{hf}=H_{hf}^{ord}+hd \quad \text{III.35}$$

$$\text{où } hd = K(3\cos^2\theta - 1). \quad \text{III.36}$$

K est une constante.

Notons H_{hf}^1 et H_{hf}^2 les champs hyperfins correspondant à l'aimantation alignée sur l'axe c de la structure ordonnée ($\theta = 0$), ou perpendiculaire à celui-ci ($\theta = \pi/2$). Nous définissons les champs d'anisotropie hd_1 et hd_2 par les relations :

$$H_{hf}^1 = H_{hf}^{ord} + hd_1 \quad \text{III.37}$$

$$H_{hf}^2 = H_{hf}^{ord} + hd_2 \quad \text{III.38}$$

A partir de la relation III.36, nous obtenons les relations suivantes [GRO 70] :

$$hd_1 = 2K \quad \text{III.39}$$

$$hd_2 = -K \quad \text{III.40}$$

Dans l'alliage FeNi [GRO 70], les champs d'anisotropie résultant de la contribution dipolaire des électrons sont respectivement égaux à $hd_1 = -29.4$ kOe (pour $\theta = 0$) et $hd_2 = +14.7$ kOe (pour $\theta = \pi/2$). Ces contributions ne sont donc pas négligeables devant les valeurs moyennes de champs hyperfins à mesurer.

Pour notre échantillon C-350 d'épaisseur 10 nm, l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche, c'est-à-dire alignée sur l'axe c de la structure ordonnée. Le champ hyperfin mesuré est donc égal à $H_{hf}^1 = H_{hf}^{ord} + hd_1$. Nous avons mesuré H_{hf}^1 (281 kOe) et nous avons évalué H_{hf}^{ord} ($H_{hf}^{ord} = 313$ kOe) ; nous pouvons en déduire la valeur du champ d'anisotropie hd_1 :

$$hd_1 = -32 \text{ kOe}$$

Nous pouvons également calculer la constante K ainsi que le champ d'anisotropie hd_2 à partir des relations III.39 et III.40 : $K = -16$ kOe et

$$hd_2 = 16 \text{ kOe}$$

Les valeurs obtenues pour les champs d'anisotropie hd_1 et hd_2 ont le même ordre de grandeur que dans le cas des alliages FeNi.

- Interprétation de la distribution de champs hyperfins

La distribution des champs hyperfins peut être attribuée, comme pour l'échantillon codéposé à température ambiante, à l'existence de sites où les atomes de fer n'ont pas le même nombre de proches voisins de fer. Nous remarquons que cette distribution s'étale vers les plus grands champs hyperfins, elle correspond donc à des sites où le nombre d'atomes Fe situés sur la première sphère de coordination est plus élevé. Cette dispersion peut résulter d'un désordre chimique : l'ordre n'est pas parfait dans cet échantillon (nous avons mesuré le paramètre d'ordre à longue distance : $S = 0.8$) et les atomes Fe dans un environnement désordonné ont un nombre de voisins Fe plus grand. Cette interprétation est compatible avec la valeur du déplacement quadrupolaire trouvée nulle, comme dans le cas de l'échantillon C-TA constitué de la phase désordonnée. Cependant, le désordre chimique ne suffit pas à expliquer la distribution de champs hyperfins, qui s'étale de 300 kOe jusqu'à des champs supérieurs à 400 kOe.

Pour interpréter la présence d'atomes Fe présentant un champ hyperfin voisin de 400 kOe, nous reprenons l'analyse en terme de premiers voisins. L'étude de l'échantillon C-TA a montré qu'un champ hyperfin égal à 343 kOe correspond à 8.34 atomes Fe sur la sphère de premiers voisins. En attribuant un apport égal 16 kOe par atome Fe situé sur la première sphère de coordination [TSU 76a], nous en déduisons que les atomes Fe de la couche mince peuvent avoir jusqu'à 12 atomes Fe en proches voisins (sur 12 atomes voisins au total dans la structure cubique à faces centrées). Nous devons donc envisager l'existence d'amas riches en fer, de structure cubique à faces centrées. Notons que cette interprétation est compatible avec la valeur du déplacement

quadrupolaire trouvée nulle : l'environnement de ces sites est isotrope. A partir du diagramme de phase (Fig. I.1), nous remarquons que la présence d'une phase riche en fer qui coexiste avec la phase ordonnée $L1_0$, peut résulter d'un écart à la composition équiatomique, dans le sens d'une plus forte concentration en fer. De tels amas n'ont pas été mis en évidence lors de la caractérisation structurale des couches minces, ni par diffraction de rayons X, ni par Microscopie Electronique en Transmission. Nous pouvons donc en déduire qu'ils sont de taille suffisamment petite pour conserver la structure tétragonale à faces centrées et être cohérents avec la matrice de la phase ordonnée $L1_0$.

Tsurin et al. [TSU 76b] ont envisagé une approche originale pour expliquer l'existence de différents champs hyperfins. Lors de l'étude par spectroscopie Mössbauer de l'alliage FePd massif, ordonné dans la structure $L1_0$, ils ont envisagé trois contributions à trois champs hyperfins distincts pour analyser les spectres : la première contribution ($H_{hf}=265$ kOe) est attribuée aux atomes de fer au niveau des zones ordonnées ; la seconde ($H_{hf}=282$ kOe) est celle des macles et la troisième ($H_{hf}=310$ kOe) correspond aux parois d'antiphase de la structure ordonnée. Les défauts structuraux comme les macles ou les parois d'antiphase peuvent être à l'origine de la dispersion des champs hyperfins, car la nature chimique des proches voisins est différente pour les atomes situés au voisinage des défauts structuraux par rapport aux atomes situés dans des zones ordonnées homogènes. Dans notre cas, l'analyse par Microscopie Electronique en Transmission a permis de mettre en évidence des macles (Fig. I.14) et des parois d'antiphase (Fig. I.16) dans la couche mince codéposée à 350°C d'épaisseur 50 nm. La présence de ces défauts va donc contribuer à l'élargissement de la distribution de champs hyperfins et au regard de l'interprétation proposée par Tsurin et al., elle contribuera à l'élargissement de la distribution vers les grandes valeurs de champs hyperfins. Cependant, la proportion volumique de défauts observés par Microscopie Electronique à Transmission est insuffisante pour rendre compte de l'intégralité de la dispersion en champs hyperfins observée. De plus, les valeurs de champs hyperfins que nous mesurons sont bien plus grandes que celles de Tsurin et al. Nous pensons que la contribution des macles et des parois d'antiphase au signal Mössbauer est dissimulée par celle des amas de fer qui est dominante.

c) Couche mince codéposée à 350°C (C-350), d'épaisseur 50 nm

Pour l'échantillon C-350 d'épaisseur 50 nm (Fig. III.34), nous pouvons proposer la superposition des trois contributions suivantes : tout d'abord, 57% des atomes de fer présentent un champ hyperfin moyen de 276 kOe et ils ont leur aimantation perpendiculaire ($\alpha=0^\circ$) ; ensuite, 14% des atomes de fer ont un champ hyperfin moyen de 317 kOe et l'angle de l'aimantation avec la normale à la couche mince est estimé à $\alpha=54^\circ$; enfin, 29% des atomes de fer ont un champ hyperfin élevé, égal à 360 kOe et la direction de l'aimantation est dans ce cas perpendiculaire au plan de la couche mince ($\alpha=0^\circ$).

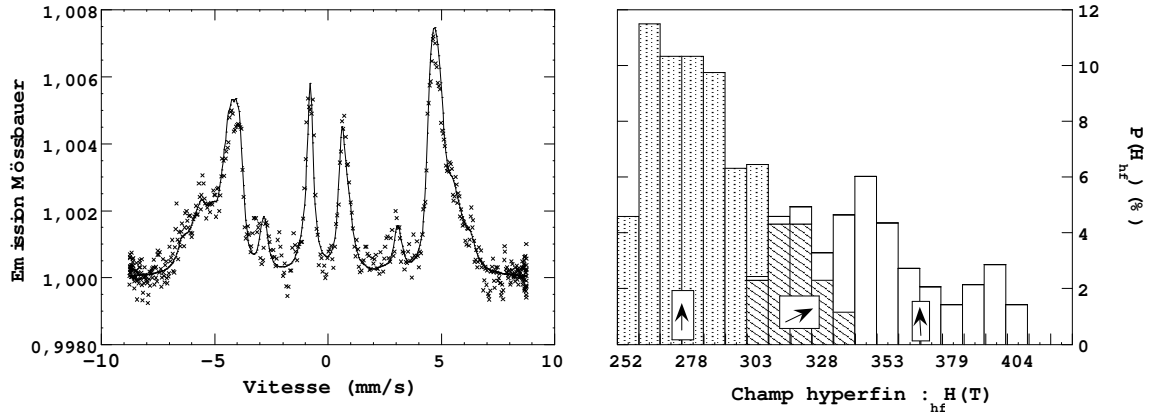


Fig. III.34 : a- Spectre Mössbauer pour l'échantillon C-350 d'épaisseur 50 nm et b- distribution en champ hyperfin.

- Contribution des atomes ayant un champ hyperfin moyen $H_{hf}=276$ kOe ($\alpha=0^\circ$)

La principale contribution (57%) correspond à un champ hyperfin moyen égal à 276 kOe et le déplacement quadrupolaire est donné par $\langle e^2qQ/2 \rangle = 0.36$ mm/s avec $\theta = 0^\circ$. Par comparaison avec la mesure précédente, sur l'échantillon C-350 d'épaisseur 10 nm, nous pensons que cette contribution correspond aux atomes Fe dans un environnement ordonné, et dont l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince.

- Contribution des atomes tels que $\alpha=54^\circ$, ayant un champ hyperfin moyen $H_{hf}=327$ kOe

Cette expérience, sur l'échantillon C-350 d'épaisseur 50 nm, confirme que les couches minces d'alliage FePd codéposées à 350°C présentent une anisotropie magnétique perpendiculaire. En ce qui concerne la contribution d'atomes Fe ayant une direction d'aimantation moyenne telle que $\alpha=\theta=54^\circ$, nous rappelons tout d'abord que le paramètre $e^2qQ/2$ du déplacement quadrupolaire n'est pas mesurable pour cette contribution, puisque le facteur $(3\cos^2\theta - 1)$ est nul. Nous rappelons également que la mesure de la direction de l'aimantation résulte de l'évaluation de l'intensité relative des raies du spectre. Un échantillon présentant une répartition isotrope des directions d'aimantation donne le même spectre magnétique qu'un échantillon qui a une direction d'aimantation faisant un angle de 54.7° par rapport au faisceau de rayons γ incidents. Or la configuration de l'aimantation au niveau des parois entre domaines magnétiques correspond justement à une distribution isotrope de la direction de l'aimantation. D'après l'image MFM des domaines magnétiques dans cet échantillon et d'après les profils théoriques de variation de l'aimantation, la proportion d'atomes Fe au niveau des parois est non négligeable : la largeur des parois est estimée à 20 nm (Fig. III.19) et la largeur des domaines est 70 nm (Fig. III.25). Nous pensons donc avoir mis en évidence la contribution des parois entre domaines magnétiques sur le spectre Mössbauer de l'échantillon C-350 d'épaisseur 50 nm. Dans le cas de l'échantillon C-350 d'épaisseur 10 nm, la taille des domaines est plus grande (supérieure à 150 nm) et donc la densité de parois plus petite. La contribution des parois au signal Mössbauer devient faible, inférieure à 5%. Ceci explique pourquoi le signal des parois n'est pas détectable sur le

spectre Mössbauer de cet échantillon peu épais, qui a de surcroît un bruit de fond très élevé.

L'analyse du spectre expérimental montre que la contribution telle que $\alpha=54^\circ$, attribuée aux parois entre domaines magnétiques, correspond à un champ hyperfin moyen égal à 317 kOe. En se rapportant à l'analyse de Gros et Paulevé [GRO 70] sur l'anisotropie du champ hyperfin, il n'est pas étonnant de trouver que le champ hyperfin des atomes Fe au niveau des parois, dans lesquelles la direction de l'aimantation par rapport à l'axe c de la structure ordonnée varie, est différent de celui des atomes Fe situés dans les domaines magnétiques, pour lesquels l'aimantation est parallèle à l'axe c (276 kOe). Les parois entre domaines magnétiques correspondent à une distribution isotrope des directions de l'aimantation, c'est pourquoi la valeur moyenne du champ hyperfin que nous mesurons (317 kOe) est égale à la partie isotrope du champ hyperfin des atomes Fe dans un environnement ordonné ($H_{hf}^{ord}=313$ kOe).

Notons que le calcul de l'anisotropie des champs hyperfins repose sur de nombreuses approximations : nous avons notamment négligé la contribution du champ dipolaire créé par les moments magnétiques des atomes voisins ainsi que la contribution du champ créé par la composante orbitale résiduelle du moment magnétique des électrons de l'atome considéré. Cependant, ce modèle simplifié permet de rendre compte de l'ordre de grandeur de l'anisotropie, qui correspond à celui que nous mesurons expérimentalement.

- Contribution aux forts champs hyperfins ($\alpha=0^\circ$)

Pour expliquer la distribution de champs hyperfins de l'échantillon C-350 d'épaisseur 10 nm, nous avons envisagé la présence d'une distribution de sites. Nous avons également suggéré la présence d'amas de fer, contribuant à des champs hyperfins élevés (jusqu'à 400 kOe). Pour l'échantillon d'épaisseur 50 nm, nous retrouvons des contributions à des champs élevés, dans des proportions plus importantes. Cependant, dans ce spectre, nous avons vu qu'il faut tenir compte de la contribution des parois : une partie du spectre, correspondant grossièrement à 20% des atomes, se déplace vers les plus forts champs. Les contributions des parois et des différents sites se mélangent, et il devient hasardeux d'analyser les proportions obtenues.

**d) Dépôt alterné en couche par couche contrôlé par le temps
(C/C-TEMPS), d'épaisseur 50 nm**

L'ajustement du spectre expérimental de l'échantillon C/C-TEMPS d'épaisseur 50 nm avec une distribution de champs hyperfins (corrélée à DI et SQ) ne peut pas se faire sans supposer une composante de l'aimantation hors du plan du film : par cette procédure d'ajustement, l'angle moyen entre la normale au film et la direction du moment est $\alpha=50^\circ$ (Fig. III.35). Le champ hyperfin moyen est égal à 330 kOe.

L'analyse précédente par mesure d'aimantation et observations MFM a révélé la présence d'une structure en rubans (Fig. III.31). En conclusion de cette étude, nous avons proposé un profil de l'aimantation dans cette couche mince (Fig. III.23) pour laquelle l'angle moyen entre la normale au film et la direction de l'aimantation est $\alpha=55^\circ$. Cette valeur théorique est en bon accord avec la valeur mesurée par l'expérience de spectroscopie Mössbauer. Ceci confirme la validité des modèles et notamment le profil supposé de variation de l'aimantation.

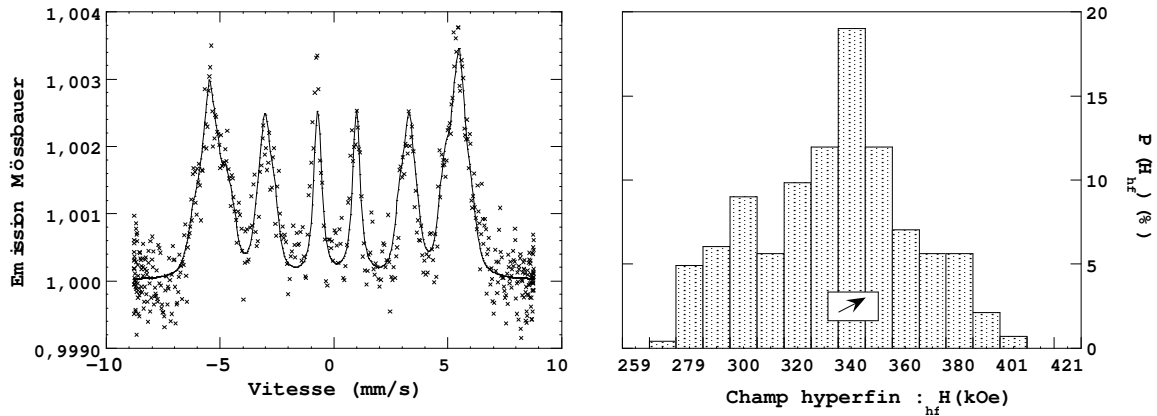


Fig. III.35 : a- Spectre Mössbauer pour l'échantillon C/C-TEMPS d'épaisseur 50 nm et b- distribution en champ hyperfin.

Nous rappelons que d'après la mesure MFM, la largeur mesurée des rubans est bien supérieure à celle prédite par les modèles (55 nm contre 33 nm). Pour expliquer cet écart, nous avons envisagé la présence de domaines de fermeture. Ces domaines peuvent correspondre à une rotation de l'aimantation à l'intérieur du plan de la couche mince (angle ϕ sur la figure III.10), sans variation par rapport au plan de celle-ci (angle θ). Dans ce cas, ils ne modifient pas la direction de l'aimantation mesurée dans l'expérience Mössbauer, puisque celle-ci est sensible seulement aux rotations de l'aimantation par rapport à la normale au plan (angle α), et pas aux rotations à l'intérieur du plan de la couche mince. Le fait que l'angle α mesuré par Mössbauer soit proche de l'angle déduit du profil théorique, calculé sans les domaines de fermeture, est donc compatible avec leur existence.

La valeur moyenne du champ hyperfin (330 kOe) est cohérente avec les analyses précédentes des échantillons C-TA et C-350, basée sur le nombre d'atomes Fe sur la première sphère de coordination, et sur l'anisotropie du champ hyperfin en fonction de la direction de l'aimantation avec l'axe c de la structure ordonnée. En effet, l'analyse EXAFS a montré un ordre local élevé dans cet échantillon C/C-TEMPS, avec un nombre de voisins Fe sur la première sphère de coordination (6.50) très proche de celui de l'échantillon C-350 (6.45) (Table II.6). Le champ hyperfin doit donc être proche du champ hyperfin des atomes dans un environnement ordonné, mais il faut également tenir compte de l'anisotropie du champ hyperfin : dans cet échantillon, la direction de l'aimantation est pratiquement isotrope, elle ressemble à la distribution de la direction de l'aimantation au niveau des parois de l'échantillon C-350 d'épaisseur 50 nm. C'est la raison pour laquelle le champ hyperfin est proche de celui mesuré pour la contribution des parois dans l'échantillon précédent (317 kOe). Le paramètre $e^2qQ/2$ du déplacement quadrupolaire n'est pas mesurable dans cet échantillon puisque le facteur $(3\cos^2\theta - 1)$ est proche de zéro ; nous pouvons seulement dire qu'un paramètre moyen $\langle e^2qQ/2 \rangle$ égal à 0.38 mm/s, qui est la valeur obtenue pour les atomes Fe dans un environnement ordonné, est compatible avec notre analyse.

Il est également intéressant de remarquer que la distribution de champs hyperfins s'étale jusqu'à 400 kOe, indiquant la présence probable d'amas riches en fer dans cet échantillon.

e) Tableau récapitulatif des paramètres Mössbauer

Le tableau récapitulatif des paramètres Mössbauer ci-dessous (Table III.2) résume les caractéristiques des spectres présentés précédemment. Il met en valeur la cohérence des résultats à travers l'évolution du déplacement isomérique (DI) d'un échantillon à l'autre.

Le déplacement isomérique est égal à 0.195 mm/s pour les atomes de fer dans un site de type ordonné (dans les domaines et dans les parois). Le déplacement isomérique diminue lorsque la concentration en atomes Fe premiers voisins augmente, comme nous pouvons le voir dans l'échantillon C-TA (0.125 mm/s) et dans les amas de fer contenus dans les échantillons C-350 (0.125 à 0.110 mm/s).

échantillon	proportion (± 4 %)	$\langle H_{hf} \rangle$ (kOe)	$\alpha (\gamma, H_{hf})$ (degrés)	$\langle SQ \rangle$ (mm/s) (± 0.02)	$\langle DI \rangle$ (mm/s) * (± 0.005)
C-TA	100 %	343 ± 3	90°	0.00	0.125
C-350 10 nm	84 %	281 ± 2	0°	0.76	0.195
	16 % désordonné, amas de fer	368 ± 5	0°	0.00	0.125
C-350 50 nm	57 %	276 ± 3	0°	0.72	0.195
	14 % paroi	317 ± 5	54°	0.00	0.195
	29 % désordonné, amas de fer	360 ± 5	0°	0.00	0.110
C/C-TEMPS	100 %	330 ± 3	50°	0.09	0.205

* Le déplacement isomérique DI est donné par rapport au fer métal à 300K.

Table III.2 : Tableau récapitulatif des paramètres Mössbauer.

Ces valeurs moyennes de déplacement isomérique cachent des distributions très différentes. Les atomes de fer appartenant aux sites ordonnés (dans les échantillons C-350) ou désordonnés (échantillon C-TA) ont des distributions très faibles ($\Delta DI \approx 0.02$ mm/s). Pour les amas de fer (dans les échantillons C-350) et pour l'échantillon C/C-TEMPS, les largeurs des distributions de déplacement isomérique sont respectivement égales à 0.08 et 0.15 mm/s. Ces distributions larges traduisent la grande variété des environnements d'un site de fer à l'autre.

3) Spectroscopie Mössbauer : résumé

Les expériences de spectroscopie Mössbauer confirment les résultats précédemment acquis : l'échantillon codéposé à température ambiante a un axe de facile aimantation dans le plan de la couche mince ; l'échantillon codéposé à 350°C a un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan de la couche mince ; l'échantillon élaboré en couche par couche d'épaisseur 50 nm présente une configuration magnétique en rubans.

Nous avons pu interpréter l'origine des champs hyperfin mesurés, en terme de nombre d'atomes Fe sur la première sphère de coordination et d'anisotropie du champ hyperfin, due à la tétragonalité des sites de fer dans la phase ordonnée. L'effet de cette anisotropie est suffisant pour pouvoir dissocier la contribution des atomes Fe situés dans les domaines magnétiques, de ceux situés dans les parois entre domaines.

E - Propriétés magnéto-optiques

Le principe de lecture de l'information utilisant des média d'enregistrement magnéto-optiques est basé sur l'effet Kerr polaire. Plus précisément, il s'agit de mesurer le sens de rotation de la polarisation d'une lumière réfléchie sur le support. Celui-ci est inversé selon la direction de l'aimantation dans la couche mince, ce qui code l'information binaire. D'après des calculs théoriques [OST 94], la mise en ordre chimique des alliages ordonnés, comme par exemple l'alliage FePd, s'accompagne d'une augmentation de l'angle de rotation Kerr et nous avons cherché à mesurer cet effet expérimentalement.

1) Principe

Les effets magnéto-optiques résultent de l'interaction entre une onde électromagnétique incidente avec le spin de l'électron. L'effet est décrit par le tenseur de permittivité : le champ électrique affecte le mouvement orbital de l'électron et la présence d'un couplage spin-orbite explique l'existence et l'amplitude de l'effet magnéto-optique dans les matériaux ferromagnétiques.

La rotation Kerr et l'ellipticité ont été mesurées sur un spectromètre dont la lumière est produite par une lampe au Xénon : elle permet de mesurer l'effet Kerr dans le domaine d'énergie 1.5 à 6 eV. L'angle d'incidence par rapport à la normale à l'échantillon est égal à 10°. Les échantillons sont mesurés dans l'état saturé : le champ extérieur, appliqué le long de la normale au plan de la couche mince, vaut 18.8 kOe, sauf pour l'échantillon C-350 mesuré sous un champ de 10 kOe.

2) Résultats expérimentaux

Les échantillons dont nous avons mesuré l'effet Kerr polaire sont les suivants :

- C-TA : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante)
- C-TA/R-420 : épaisseur 50 nm (codéposition à température ambiante, suivie par un recuit de 10 minutes à 420°C)
- C-350 : épaisseur 50 nm (codéposition à 350°C)
- C/C-TEMPS : épaisseur 50 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt)
- C/C-RHEED : épaisseur 10 nm (dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED)

Les spectres correspondant à la rotation Kerr et à l'ellipticité sont présentés sur la figure III.36. Une caractéristique commune à tous les spectres de rotation Kerr est la présence de deux minima autour de 1.6 et 4.6 eV. Les différences structurales entre les échantillons affectent l'amplitude de ces pics.

a) Echantillon C/C-RHEED

Nous remarquons que le spectre de l'échantillon C/C-RHEED s'écarte des autres : tout d'abord, la valeur absolue de la rotation Kerr est réduite aux fortes longueurs d'onde (faibles énergies). Ceci peut s'expliquer par un effet d'épaisseur de l'échantillon. Nous rappelons que l'épaisseur de cet échantillon est limitée à 10 nm alors que les quatre autres échantillons ont une épaisseur de 50 nm. En fait, l'angle de rotation Kerr est proportionnel à l'épaisseur de matériau sondée. Pour les fortes longueurs d'onde (c'est-à-dire pour les faibles énergies), la longueur de pénétration est supérieure à 10 nm si bien que plus de matière contribue au signal pour les échantillons épais de 50 nm que pour l'échantillon C/C-RHEED épais de 10 nm. En conséquence, la valeur absolue de l'angle de rotation Kerr est réduite. En plus d'une réduction de la valeur absolue de la rotation, nous pouvons noter un déplacement de la position des pics dans le spectre : par exemple, les quatre échantillons épais de 50 nm présentent un pic vers 4.6 eV qui se déplace à 4.9 eV pour l'échantillon C/C-RHEED. Dans l'échantillon C/C-RHEED plus fin, la lumière atteint la couche tampon de palladium, si bien que les propriétés optiques du Pd doivent être prises en compte pour l'analyse de ce spectre. En particulier, la contribution des atomes de Pd polarisés à l'interface Pd/FePd peut résulter dans un déplacement des pics. Le spectre des atomes Pd polarisés a été mesuré par Reim [REI 91] : il se caractérise par un maximum vers 1.5 eV et un minimum vers 3.5 eV. La contribution des atomes Pd polarisés n'est donc pas triviale.

b) Influence du recuit : comparaison entre les échantillons C-TA et C-TA/R-420

Les spectres de rotation Kerr pour les échantillons C-TA et C-TA/A-420 sont voisins. Ceci n'est pas surprenant puisque les études par diffraction de rayons X et par EXAFS ont montré que le recuit n'a pas eu d'influence sur la structure de la couche. Plus précisément, le recuit n'a pas induit d'ordre à longue distance et seul un changement des paramètres de maille a pu être observé, le volume de la maille unité restant inchangé.

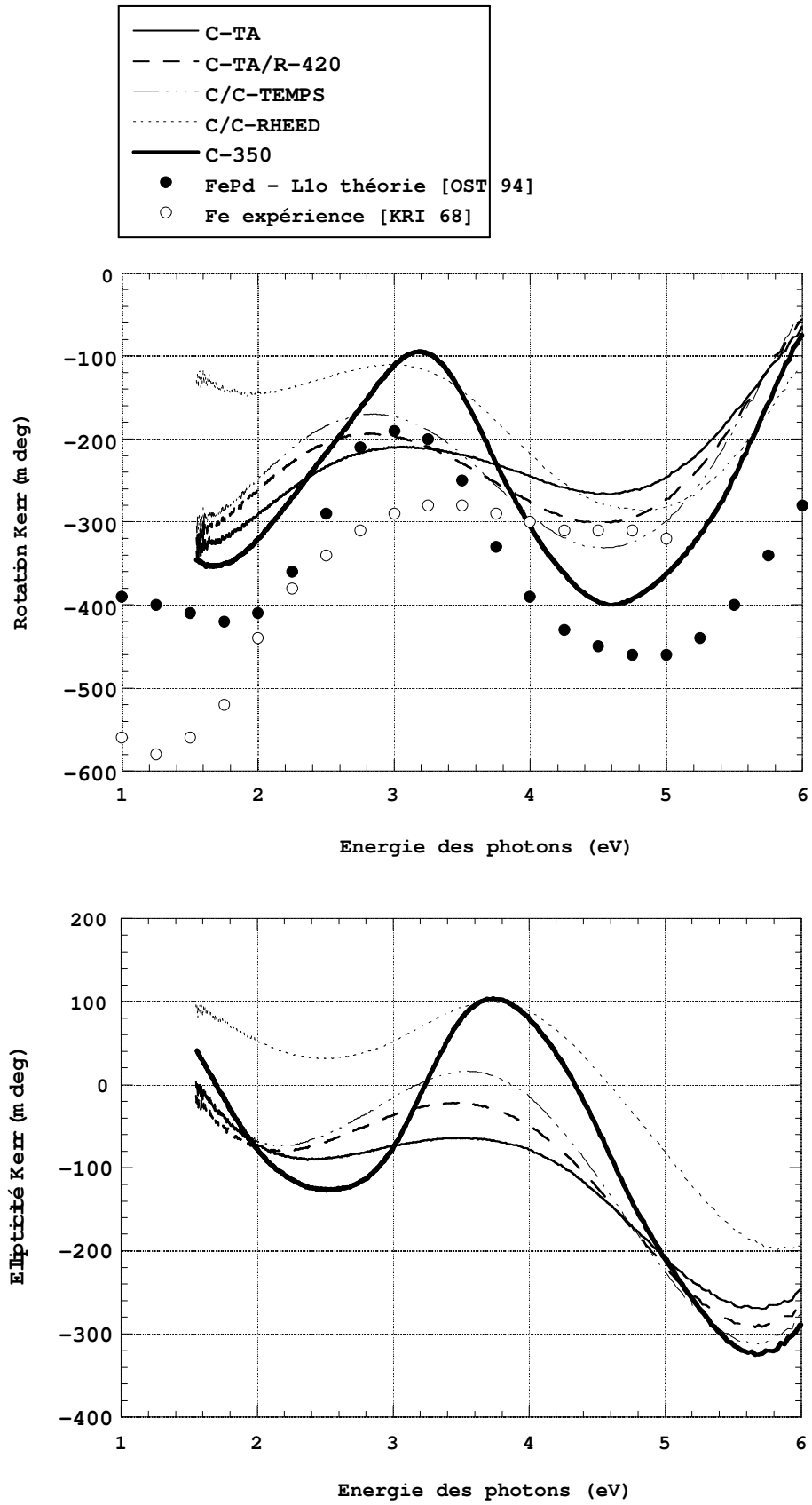


Fig. III.36 : Spectres de rotation et d'ellipticité Kerr en géométrie polaire.

c) Influence du palladium : comparaison entre la phase désordonnée FePd et le spectre du fer

Le spectre de rotation Kerr du fer [KRI 68] possède un grand pic aux faibles énergies. L'amplitude de ce pic est fortement réduite par la présence du palladium. Cette contribution négative du Pd autour de 1.5 eV a déjà été observée par Reim [REI 91]. Ce phénomène est similaire à ce qui est observé dans les systèmes terres rares - métaux de transition, dans lesquels il est interprété comme l'influence de la structure de bandes du métal de transition, polarisées en spin près de l'énergie de Fermi par hybridation. Cet effet conduit à une augmentation de l'élément non diagonal de la matrice de conductivité σ_{xy} avec un signe opposé qui se traduit par la diminution de l'effet Kerr.

d) Influence du degré d'ordre : comparaison entre les échantillons C-TA, C/C-TEMPS et C-350

Les échantillons C-TA, C/C-TEMPS et C-350 ont la même épaisseur de couche tampon, de couche d'alliage et de couche de protection. Les spectres peuvent être comparés directement et cette analyse donne l'évolution de la rotation Kerr avec le degré d'ordre chimique dans la couche mince de l'alliage FePd. Nous observons que plus les échantillons sont ordonnés, plus les pics dans le spectre sont prononcés. Comme il n'y a pas de singularités dans l'élément diagonal de la matrice de conductivité σ_{xx} ni pour l'alliage FePd, ni pour le palladium [JOH 74], cet effet est dû au changement de la structure de bandes lors de la mise en ordre : il révèle que les transitions électroniques ont lieu dans des domaines d'énergie plus étroits. Cette évolution du spectre avec le degré d'ordre a déjà été observé dans des couches minces d'alliage FePt [CEB 94]. Cependant, nous trouvons que pour l'alliage FePd, la mise en ordre affecte plus particulièrement le pic à 4.6 eV et moins le pic à 2.0 eV.

e) Comparaison entre l'échantillon C-350 et le spectre théorique de la phase ordonnée L10

Nous rappelons que l'étude structurale a révélé un fort degré d'ordre chimique pour l'échantillon C-350. Nous remarquons ici que le spectre expérimental de cet échantillon est très proche du spectre théorique calculé pour la phase L10 [OST 94] : dans les deux cas, le spectre a une structure à deux pics ; la position et l'amplitude des pics du spectre expérimental sont très bien reproduit par le spectre théorique. Cette similitude montre la grande qualité de l'échantillon C-350. Nous insistons sur le fait que le spectre expérimental, mesuré sur un échantillon monocristallin et chimiquement ordonné, s'ajuste bien sur le spectre théorique alors que les données expérimentales de Reim et al. [REI 91] mesurées sur des échantillons polycristallins s'en écartent. En fait, plusieurs auteurs ont observé l'influence de la structure des couches sur le spectre Kerr. Par exemple, dans une étude concernant le fer [OPP 92a], Oppeneer et al. ont montré que les calculs de conductivité optique reproduisent bien ce qui est mesuré sur des échantillons monocristallins, mais ils s'ajustent très mal aux mesures réalisées sur des polycristaux.

Pour comparer le spectre théorique de la phase L10 avec nos données expérimentales sur l'échantillon C-350, il faut noter que les transitions intra-bandes ne sont pas prises en compte pour le calcul du spectre théorique [OST 94]. Ces transitions ne

contribuent toutefois que pour les faibles énergies, inférieures à 2 eV. En conséquence, elles n'influencent pas le spectre expérimental mesuré dans notre cas pour des énergies supérieures à 2 eV, ce qui explique le bon accord entre les spectres calculés et mesurés.

De plus, les paramètres de maille utilisés pour le calcul sont ceux de la phase ordonnée $L1_0$ à l'état massif : $a_{//}=3.86$ Å et $a_{\perp}=3.73$ Å [VIL 85]. Dans notre cas, la couche est contrainte sur la couche tampon de Pd dont le paramètre de maille est $a_{//}=3.89$ Å mais les contraintes sont progressivement relaxées en cours de croissance. Les paramètres de maille de la partie supérieure de la couche mince, qui contribue au signal Kerr, sont plus proches des paramètres de maille de la phase ordonnée à l'état massif, utilisés pour le calcul du spectre théorique. Ceci explique le bon accord de la position des pics entre les spectres théoriques et expérimentaux.

3) Discussion

Le spectre théorique pour la phase $L1_0$ ordonnée, comme le spectre expérimental de l'échantillon C-350, se caractérise par une structure à deux pics dans le domaine d'énergie 1.5 - 6 eV. Cette caractéristique apparaît également sur les spectres d'alliage FePt [CEB 94, LAI 93, SUG 93], CoPt et CoPd [BUS 83, WEL 92, ZEP 89]. Le domaine des faibles énergies a principalement été étudié et les spectres correspondant font apparaître un pic vers 2 eV qui s'accroît lors de la mise en ordre. Aucun signe d'une réduction des constantes optiques n'a été trouvé autour de 2 eV [SUG 93] ce qui exclut cet effet comme origine pour le grand effet Kerr mesuré. De plus, Cebollada et al. [CEB 94] ont vérifié que des variations du paramètre de maille de $\pm 2\%$ n'avaient pas un effet significatif sur le spectre théorique si bien que des changements du rapport $a_{\perp}/a_{//}$ ne peuvent pas expliquer les variations d'effet Kerr. Les auteurs s'accordent pour dire que la forme des spectres résulte de la brisure de symétrie introduite par la formation du super-réseau de la phase ordonnée $L1_0$: la présence d'un champ uniaxial conduit à la modification de la structure de bandes par l'hybridation avec les orbitales 3d des atomes Fe. Le rôle des atomes Pd ou Pt est principalement de créer, à travers cette hybridation, des états qui contiennent le fort couplage spin-orbite des atomes Pd ou Pt. Oppeneer et al. ont démontré par des calculs numériques que l'angle de rotation Kerr augmente linéairement avec l'amplitude du couplage spin-orbite [OPP 92b]. Ceci explique que l'angle de rotation est plus élevé dans l'alliage FePt (0.8 et 0.9 degrés à 2 et 4.8 eV) que dans l'alliage FePd (0.35 et 0.4 degrés à 1.8 et 4.6 eV).

Notre étude montre que les effets magnéto-optiques sont très sensibles au degré d'ordre à courte distance. En effet, les spectres des échantillons C-TA et C/C-TEMPS sont très différents alors que le degré d'ordre à longue distance est proche de 0 dans les deux cas. La différence entre les échantillons réside dans le degré d'ordre à courte distance : celui-ci est plus élevé dans l'échantillon C/C-TEMPS que dans l'échantillon C-TA. Le fait que les spectres Kerr soient très différents montre expérimentalement que l'anisotropie locale affecte beaucoup la structure de bandes.

4) Propriétés magnéto-optiques : résumé

Nous avons montré que le spectre de rotation Kerr de couches minces d'alliage FePd se caractérise par une structure à deux pics, comme c'est le cas pour d'autres alliages métalliques ordonnés. Dans le système FePd, l'accord entre le spectre théorique et les données expérimentales est très bon.

La mise en ordre s'accompagne d'un changement de la structure de bandes électroniques. Il en résulte une forte anisotropie magnéto-cristalline et une augmentation de la rotation Kerr. L'angle de rotation maximum est 0.4° pour une lumière d'énergie 4.5 eV. Le pic observé autour des faibles longueur d'onde fait de l'alliage FePd un candidat possible pour l'enregistrement magnéto-optique à haute densité.

CHAPITRE III : CONCLUSION

Le point essentiel de ce chapitre réside dans la cohérence des résultats : par l'intermédiaire de modèles micromagnétiques, nous avons pu relier l'anisotropie uniaxiale du matériau aux propriétés magnétiques macroscopiques (susceptibilité magnétique) et microscopiques (taille des domaines magnétiques) des couches minces. L'alliage FePd s'avère être un matériau très bien adapté pour cette étude des relations entre l'anisotropie perpendiculaire et les propriétés magnétiques, puisque l'anisotropie peut-être modifiée par le contrôle du degré d'ordre chimique.

Nous avons également étudié les propriétés magnétiques des couches minces à l'échelle atomique, en mesurant le champ hyperfin par spectroscopie Mössbauer. Nous avons pu relier ces résultats à l'ordre local mesuré par EXAFS, en tenant compte du nombre d'atomes Fe premiers voisins et de l'anisotropie directionnelle de l'ordre chimique. Nous souhaitons insister sur la richesse des résultats de l'expérience Mössbauer : cette mesure différencie chaque site Fe, avec son environnement et son magnétisme propre. Nous avons obtenu, pour chaque échantillon, la distribution des sites Fe et celle-ci renferme beaucoup plus d'informations qu'une vision moyenne de ces différents sites. Malgré des conditions de mesure difficiles, à cause de la très faible quantité d'atomes ^{57}Fe dans nos couches minces, le signal Mössbauer s'est révélé être très sensible à l'ordre chimique : les spectres des échantillons sont tous très différents. Cette technique apparaît donc puissante pour étudier les phénomènes de mise en ordre et d'anisotropie magnétique dans les alliages métalliques à base de fer.

Conclusion Générale

1) Résultats acquis

Ce travail a consisté en l'élaboration par Epitaxie par Jets Moléculaires et la caractérisation structurale et magnétique de couches minces d'alliages ordonnés FePd. Différentes procédures d'élaboration ont été mises en oeuvre et nous avons systématiquement caractérisé le degré d'ordre à longue distance par diffraction de rayons X, le degré d'ordre à courte distance directionnel par spectroscopie EXAFS, ainsi que l'anisotropie magnétique uniaxiale des couches minces par des mesures de magnétométrie (Table C1). Les résultats marquants de cette étude sont les suivants :

- En ce qui concerne l'élaboration, nous avons montré qu'il n'est pas aussi simple de construire, en dépôt alterné couche par couche, des super-réseaux dont la période est égale à deux plans atomiques. La méthode la plus efficace pour obtenir la mise en ordre chimique se révèle être la codéposition en température.
- Le point fort de la caractérisation structurale réside dans le fait que nous ayons pu mesurer à la fois le degré d'ordre à longue distance et le degré d'ordre à courte distance directionnel. Nous avons ainsi pu mettre en valeur la complémentarité de ces paramètres.
- Le fait marquant de la caractérisation magnétique repose sur l'interprétation, par des modèles micromagnétiques, des différents résultats expérimentaux. Nous avons ainsi pu corrélérer l'anisotropie uniaxiale du matériau à la susceptibilité magnétique et à la taille des domaines magnétiques.

Rappelons que la motivation initiale de ce travail était la compréhension de l'origine de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les systèmes d'alliages métalliques ordonnés. La question posée en introduction était la suivante : quel est le paramètre pertinent qui permet de caractériser le degré d'ordre de l'alliage et de rendre compte de l'anisotropie magnétique ? Au cours de notre travail, nous avons défini les méthodes de caractérisation qui permettent de caractériser les paramètres appropriés et le tableau C1 nous permet de dégager des premiers éléments de réponses :

- L'ordre à courte distance directionnel joue un rôle essentiel dans l'existence de l'anisotropie magnétique. En effet, l'échantillon élaboré en dépôt alterné couche par

couche contrôlé par le temps de dépôt (C/C-TEMPS) présente une anisotropie perpendiculaire non négligeable, qui est à l'origine d'une configuration en rubans pour des épaisseurs de couches minces supérieures à 27 nm. Puisque l'ordre à longue distance est nul dans cet échantillon, l'anisotropie magnétique uniaxiale ne peut résulter que de l'ordre à courte distance directionnel.

- Cependant, l'ordre à longue distance joue également un rôle. Les échantillons élaborés en dépôt alterné de couches atomiques, contrôlé par le temps de dépôt (C/C-TEMPS) ou par les oscillations RHEED (C/C-RHEED), présentent un ordre à courte distance directionnel équivalent. La présence d'une anisotropie magnétique uniaxiale plus élevée dans l'échantillon C/C-RHEED s'explique par l'existence d'un ordre à longue distance plus élevé.

Procédure d'élaboration	Ordre à Longue Distance (OLD)	Ordre à Courte Distance Directionnel (OCDD)	Anisotropie magnétique $\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2$
codéposition à température ambiante (C-TA)	0	0	0.11
codéposition à température ambiante, suivie par un recuit durant 10 minutes à 420°C (C-TA/R-420)	0	0	0.17
dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par le temps de dépôt (C/C-TEMPS)	0	+	0.39
dépôt alterné en couche par couche, contrôlé par les oscillations RHEED (C/C-RHEED)	+	+	0.57
codéposition à 350°C (C-350)	++	++	1.55

Table C1 : Tableau récapitulatif des différentes procédures d'élaboration des couches minces d'alliages FePd, rappelant le degré d'ordre à longue distance et le degré d'ordre à courte distance directionnel des alliages, ainsi que l'anisotropie magnétique uniaxiale en unités réduites des couches minces.

2) Perspectives

Plusieurs voies sont envisageables pour la poursuite de ce travail. Tout d'abord, des expériences complémentaires peuvent être entreprises pour compléter les résultats de la présente étude, visant à élucider les relations qui existent entre l'ordre chimique et l'anisotropie magnétique. En effet, l'ordre à courte distance directionnel, tel que nous avons pu le mesurer par des expériences de spectroscopie EXAFS, ne correspond qu'à la contribution des premiers voisins. Des mesures complémentaires doivent maintenant être envisagées pour déterminer si l'influence que nous avons observée, de l'ordre à longue distance sur l'anisotropie magnétique, correspond à la contribution des seconds voisins ou des sphères de coordination d'ordre supérieur. Par ailleurs, pour mieux comprendre les relations qui existent entre l'ordre chimique et l'anisotropie magnétique, il serait intéressant d'augmenter le nombre de données expérimentales. Nous pouvons obtenir des échantillons de degré d'ordre varié et pour cela, deux voies nous paraissent envisageables : la première consiste à mettre en oeuvre de nouvelles procédures de dépôt (varier la température des codépôts, varier les procédures de recuit, effectuer des dépôts alternés de couches atomiques en température) ; la deuxième voie consiste à jouer sur la composition de l'alliage. Nous pensons également qu'il faut maintenant se tourner vers des méthodes de mesures plus directes de l'anisotropie magnétique, comme des expériences de couple de torsion par exemple, afin d'analyser avec fiabilité ce paramètre. Enfin, pour comprendre l'origine de l'anisotropie magnétique, les résultats expérimentaux devront être confrontés à des développements théoriques, comme des calculs de structure électronique.

Dans ce manuscrit, nous nous sommes attachés à la compréhension des propriétés magnétiques des couches minces à l'équilibre : la taille des domaines magnétiques, de même que la susceptibilité, a été mesurée en faisant intervenir des procédures de désaimantation, ce qui a permis d'interpréter les résultats expérimentaux par des modèles théoriques basés sur une minimisation de l'énergie magnétique du système. L'étude des propriétés magnétiques des couches minces peut être poursuivie en s'orientant vers la compréhension des propriétés hors équilibre, comme la coercivité ou la rémanence. La maîtrise de ces paramètres est en effet essentielle si l'on envisage l'utilisation des alliages métalliques pour des applications industrielles. Ces propriétés devront probablement être mises en relation avec la nature et la densité des défauts cristallins présents dans les couches minces et dont nous avons déjà abordé l'étude dans ce manuscrit.

Au cours de notre travail, nous avons montré que les alliages métalliques sont des systèmes qui peuvent présenter des valeurs élevées de l'anisotropie uniaxiale. De plus, l'anisotropie perpendiculaire des couches minces peut être variée en modifiant le degré d'ordre chimique de l'alliage. Il est maintenant intéressant de fabriquer des nanostructures magnétiques, par lithographie des couches minces d'alliages métalliques étudiées dans ce manuscrit, afin d'étudier la configuration magnétique dans des entités magnétiques aux dimensions latérales réduites.

ANNEXES

Annexe 1 - Propriétés de l'alliage FePd massif à la composition équiatomique : revue bibliographique

	phase désordonnée γ	phase ordonnée de type $L1_0$
Structure cristalline	réseau cubique à faces centrées a=3.79 Å [RAU 63] a=3.801 Å [PEA 64] a=3.803 Å [LON 68]	réseau tétragonal à faces centrées a _{//} =3.87 Å et a _⊥ =3.68 Å [RAU 63] a _{//} =3.852 Å et a _⊥ =3.723 Å [PEA 64] a _{//} =3.86 Å et a _⊥ =3.71 Å [LON 68] a _{//} =3.860 Å et a _⊥ =3.731 Å [VIL 85] a _{//} =3.854 Å et a _⊥ =3.712 Å [MIY 90]
Température de Curie	430 °C [FAL 38] 430 °C [KNI 55] 440 °C [MAT 80]	470 °C [FAL 38] 470 °C [KNI 55] 455 °C [LON 68]
Aimantation à saturation	1070 emu/cm ³ (à 300K) [KUS 64] 1050 emu/cm ³ (à 4.2 K) [MIY 86b, MIY 90]	1090 emu/cm ³ (à 300K) [KUS 64] 1050 emu/cm ³ (à 4.2 K) [MIY 86b, MIY 90] 1120 emu/cm ³ [YER 90] 1100 emu/cm ³ [ZHA 94]
Moment magnétique	1.75 μ_B /at [CAB 65] (2.85 μ_B /at Fe et 0.35 μ_B /at Pd) 1.6 μ_B /at [DOR 75] (2.8 μ_B /at Fe et 0.3 μ_B /at Pd) 1.6 μ_B /at [MAT 80] 1.7 μ_B /at [MAT 83] (2.7 μ_B /at Fe et 0.8 μ_B /at Pd) 1.6 μ_B /at [MIY 86a]	
Anisotropie magnéto-cristalline	K ₁ ~-10 ⁴ erg/cm ³ [MAG 68] K ₁ ~-10 ⁴ erg/cm ³ [MIY 86a]	K _u ¹ =2.6x10 ⁷ erg/cm ³ [KUS 64] K _u ¹ =1.7x10 ⁷ erg/cm ³ [MAG 68] K _u ¹ =2.1x10 ⁷ erg/cm ³ , K _u ² <<K _u ¹ [MIY 90] K _u ¹ =2.2x10 ⁷ erg/cm ³ , K _u ² <<K _u ¹ [YER 90] K _u ¹ ~3x10 ⁷ erg/cm ³ [ZHA 94]

	phase désordonnée γ	phase ordonnée de type $L1_0$
Magnétostriction	à 300K : $\lambda_s=40 \times 10^{-6}$ [SCH 84] à 300K : [MIY 86c] $\lambda_{100}=52 \times 10^{-6}$, $\lambda_{111}=40 \times 10^{-6}$ $B_1=-1.72 \times 10^7$ erg/cm ³ $B_2=-8.76 \times 10^7$ erg/cm ³	à 300K : $\lambda_s=40 \times 10^{-6}$ [SCH 84]
Constantes élastiques	pour Fe ₅₅ Pd ₄₅ : [CHE 93] $C_{11}=16 \times 10^{11}$ erg/cm ³ $C_{12}=13.8 \times 10^{11}$ erg/cm ³ $C_{44}=7.3 \times 10^{11}$ erg/cm ³	
Température de Debye	$\theta_D=310$ K [KUA 88]	$\theta_D=385$ K [KUA 88]
Spectroscopie Mössbauer	$H_{hf}=320$ kOe (à 300K) [LON 68] $H_{hf}=323$ kOe (à 300K) [TSU 76a] $H_{hf}=350$ kOe (extrapolation à 0 K)	$H_{hf}=267.9$ kOe (à 300K) [LON 68] $H_{hf}=281$ kOe (à 4.2K) $H_{hf}=267$ kOe (à 300K) [TSU 76a] $H_{hf}=286$ kOe (extrapolation à 0K) 3 contributions (à 300K) : [TSU 76b] $H_{hf}=264.6$ kOe : zones ordonnées $H_{hf}=282.5$ kOe : macles $H_{hf}=310.0$ kOe : parois d'antiphase $H_{hf}^{ord} < H_{hf}^{dés}$ [OSH 81]
Magnéto-résistance	$\Delta\rho/\rho_0=0.83$ % (à 300K) [HSU 79, HSU 83]	$\Delta\rho/\rho_0^{ord} < \Delta\rho/\rho_0^{dés}$ [HSU 79, HSU 83]
Coercivité	2 Oe [KNI 55] 2.5 Oe [KUS 63]	160 Oe [KNI 55] 260 Oe [KUS 63] 100-200 Oe [KUS 64] 500 Oe [ZHA 94]

Annexe 2 - Systèmes d'unités c.g.s. et S.I.

Nous avons choisi d'utiliser, tout au long de ce mémoire, le système d'unités c.g.s. pour l'expression des grandeurs magnétiques. Ceci permet en effet une simplification d'écriture des équations. De plus, ce système est le plus couramment utilisé dans la littérature. Nous présentons ci-dessous des tables de conversion du système c.g.s. vers le système d'unités international S.I.

- Tables de conversion :

grandeur physique	symbole	c.g.s.	S.I.
champ magnétique	H	1 Oersted	$10^3 / 4\pi \text{ A.m}^{-1}$
induction	B	1 Gauss	10^{-4} Teslas
aimantation par unité de volume	M	1 emu.cm^{-3}	10^3 A.m^{-1}
moment magnétique	μ	1 emu	10^{-3} A.m^2
susceptibilité	χ	$1 \text{ emu.cm}^{-3}.\text{Oe}^{-1}$	4π (sans dim.)
constante d'anisotropie	K	1 erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}
constante d'échange	A	1 erg.cm^{-1}	10^{-5} J.m^{-1}
constante de magnétostriction	B	1 erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}
longueur	l	1 cm	10^{-2} m
énergie par unité de volume	E	1 erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}

constante	symbole	c.g.s.	S.I.
perméabilité du vide	μ_0	1 (sans dim.)	$4\pi.10^{-7} \text{ T.m.A}^{-1}$
magnéton de Bohr	μ_B	$9.274015.10^{-21} \text{ erg.G}^{-1}$	$9.274015.10^{-24} \text{ J.T}^{-1}$

- Equations fondamentales du magnétisme :

c.g.s.	S.I.
$B = 4\pi M + H$	$B = M + \mu_0 H$
$M = \chi H$	$M = \chi H = \mu_0 \bar{\chi} H$
$B = \mu H$	$B = \mu H = \mu_0 \bar{\mu} H$
$H_d = -N.M$	$H_d = -\frac{1}{\mu_0} N.M$
$E_m = \frac{1}{8\pi} (B.H)_{\max}$	$E_m = \frac{1}{2} (B.H)_{\max}$

Annexe 3 - Liste des symboles utilisés dans le texte

1) Paramètres caractérisant la dimension des couches minces et les propriétés physiques du matériau

h	épaisseur de la couche mince (cm)
K_u	constante d'anisotropie uniaxiale (erg/cm ³)
A	constante d'échange (erg/cm)
M_s	aimantation à saturation (Gauss = emu/cm ³)
K_{eff}	constante d'anisotropie uniaxiale effective (erg/cm ³) : $K_{eff} = K_u - 2\pi M_s^2$
\hat{K}	constante d'anisotropie uniaxiale en unités réduites : $\hat{K} = K_u / 2\pi M_s^2$
μ	permittivité magnétique : $\mu = 1 + 2\pi M_s^2 / K_u$
σ_w	densité d'énergie d'une paroi de Bloch à 180° (erg/cm ²) : $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u}$
D_0	longueur dipolaire : $D_0 = \sigma_w / 2\pi M_s^2$
δ	taille caractéristique de la largeur de paroi à 180° (cm) : $\delta = \sqrt{A/K_u}$

2) Paramètres intervenant dans la modélisation des processus d'aimantation

$\theta(x)$	angle de l'aimantation par rapport au plan de la couche mince
θ_0	angle maximum de l'aimantation par rapport au plan de la couche mince
M	aimantation mesurée suivant la direction du champ appliqué (emu/cm ³)
m	aimantation, en unités réduites : $m = M/M_s$
H	champ magnétique appliqué (Oe)
H_r	champ magnétique appliqué, en unités réduites : $H_r = H/4\pi M_s$
χ_r	susceptibilité en champ perpendiculaire, en unités réduites : $\chi_r = \left(\frac{\partial m}{\partial H_r} \right)_{m=0}$
$2d$	période des domaines magnétiques (cm) (NB : en champ nul, la taille des domaines magnétiques est d)
α	inverse de la période des domaines magnétiques, en unités réduites : $\alpha = h\sqrt{\mu}/2d$ dans le cas d'un champ extérieur appliqué perpendiculairement au plan de la couche mince :
d_1	taille des domaines magnétiques dont l'aimantation est parallèle à H
d_2	taille des domaines magnétiques dont l'aimantation est antiparallèle à H

σ densité d'énergie de paroi entre deux domaines magnétiques (erg/cm²)

Les énergies suivantes sont exprimées en unités réduites, i.e. égales à une énergie par unité de volume divisée par $2\pi M_s^2$.

e_H énergie apportée par le champ extérieur

e_w énergie de parois entre domaines magnétiques

e_K énergie d'anisotropie magnéto-cristalline

e_d énergie démagnétisante

e_t énergie totale

Annexe 4 - Liste des fonctions mathématiques utilisées dans le texte

$K(k)$ intégrale elliptique complète du premier type

$$K(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\alpha}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \alpha}}$$

$E(k)$ intégrale elliptique complète du second type

$$E(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - k^2 \sin^2 \alpha} . d\alpha$$

$F(\varphi|k)$ intégrale elliptique du premier type

$$F(\varphi|k) = \int_0^{\varphi} \frac{d\alpha}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \alpha}}$$

$\text{am}(u|k)$ fonction elliptique amplitude de Jacobi

$$\varphi = \text{am}(u|k) \text{ est défini par la relation } u = F(\varphi|k) = \int_0^{\varphi} \frac{d\alpha}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \alpha}}$$

$\text{sn}(u|k)$ fonction elliptique sinus-amplitude de Jacobi

$$\text{sn}(u|k) = \sin[\text{am}(u|k)]$$

$$\sin \varphi = \text{sn}(u|k) \text{ signifie que } u = \int_0^{\varphi} \frac{d\alpha}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \alpha}}$$

$\zeta(s)$ fonction Zeta définie par : $\zeta(s) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^s}$

$$\text{Remarque : } \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2k+1)^3} = \frac{7}{8} \zeta(3) \text{ et } \zeta(3) \approx 1.20$$

$\text{Li}_n(z)$ fonction polylogarithmique définie par : $\text{Li}_n(z) = \sum_{p=1}^{\infty} \frac{z^p}{p^n}$

Annexe 5 - Modélisation micromagnétique

Cette annexe est consacrée au développement d'un nouveau modèle micromagnétique, qui s'applique dans le cas particulier des fortes anisotropies, aux faibles épaisseurs. Dans une première partie, nous introduisons " l'effet de μ " dans l'expression de l'énergie magnétique totale. Ensuite, nous dérivons les expressions de la taille des domaines et de la susceptibilité, en fonction de l'épaisseur de la couche mince.

1) " l'effet de μ " sur l'énergie magnétique totale

L'énergie d'une couche mince d'un matériau ayant une anisotropie uniaxiale est calculée par Kooy et Enz [KOO 60] dans le cas de domaines magnétiques rectilignes parallèles. Les hypothèses de ce modèle sont les suivantes :

- le matériau possède une anisotropie magnéto-cristalline uniaxiale représentée par la constante K_u , et la direction de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la couche mince ;
- l'épaisseur h de l'échantillon est uniforme et ses dimensions latérales sont infinies ;
- le champ d'anisotropie $2K_u/M_s$ est très supérieur au champ démagnétisant de la couche mince dans l'état saturé perpendiculaire, égale à $4\pi M_s$; cette approximation signifie que l'on ne prend pas en compte la présence éventuelle de domaines de fermeture proches de la surface ; cependant, Kooy et Enz traitent " l'effet de μ ", initialement introduit par Shockley [SHO 48], qui rend compte du fait que sous l'influence du champ démagnétisant, l'aimantation peut s'écarter un peu de l'axe perpendiculaire.
- le champ H est appliqué dans la direction perpendiculaire au plan de la couche mince.
- l'épaisseur de la couche mince est suffisamment petite pour pouvoir considérer que les domaines magnétiques sont des bandes parallèles avec le champ démagnétisant et les parois de Bloch perpendiculaires à la surface de l'échantillon.

L'énergie totale e_t du système est la somme de l'énergie apportée par le champ extérieur e_H , l'énergie de paroi entre domaines magnétiques e_w , l'énergie magnétocristalline e_K et l'énergie démagnétisante e_d de la configuration en domaines magnétiques : $e_t = e_H + e_w + e_K + e_d$. Nous donnons ci-après les expressions des énergies dans le système d'unités réduites présenté dans l'annexe 1 (i.e. les énergies divisées par $2\pi M_s^2$, le champ magnétique divisé par $4\pi M_s$ et l'aimantation divisée par M_s).

- L'énergie apportée par le champ appliqué est : $e_H = -2H_r \cdot m$ A5.1

avec $m = \frac{M}{M_s} = \frac{d_1 - d_2}{d_1 + d_2}$.

- L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline par unité de volume est nulle.

- La densité d'énergie de paroi (par unité de surface de paroi) est constante et égale à $\sigma_w = 4\sqrt{AK_u}$ donc : $e_w = \frac{2D_0\alpha}{h\sqrt{\mu}}$ A5.2

avec $D_0 = \frac{\sigma_w}{2\pi M_s^2}$, $\alpha = \frac{h\sqrt{\mu}}{(d_1 + d_2)}$ et $\mu = 1 + \frac{2\pi M_s^2}{K_u}$

- L'énergie démagnétisante est obtenue en considérant la distribution de charges en surface ayant la forme d'une fonction créneau [KOO 60] :

$$e_d = m^2 + \frac{4\sqrt{\mu}}{\alpha\pi^3} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \sin^2\left[\frac{n\pi}{2}(1+m)\right] \times \frac{1}{n} \frac{2 \cdot \sinh(n\pi\alpha)}{\sinh(n\pi\alpha) + \sqrt{\mu} \cosh(n\pi\alpha)} \quad A5.3$$

Pour des valeurs de α pas trop petites, Kooy et Enz [KOO 60] remplacent la fraction comportant des fonctions trigonométriques hyperboliques par le terme :

$$f_k = \frac{2}{1+\sqrt{\mu}} [1 - \exp(-2n\pi\alpha)] \quad A5.4$$

Cependant cette approximation n'est pas valable pour les petites valeurs de α qui nous intéressent plus particulièrement dans le cas des couches minces d'alliage FePd. Kaplan et Gehring [KAP 93] ont proposé une approximation valable dans le cas où α est petit en considérant toutefois $\mu = 1$, c'est-à-dire dans le cas des fortes valeurs d'anisotropie. Dans ce cas, ils montrent que le logarithme du rapport d/h varie linéairement avec $1/h$:

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \left(\frac{\pi b}{2} + 1\right) \quad A5.6$$

avec $b = -0.666$ pour le cas de domaines magnétiques rectilignes parallèles.

Nous proposons ici une approximation améliorée qui conduit au bon comportement asymptotique quand α tend vers 0 ou vers $+\infty$, tout en prenant en compte l'effet de μ . La fraction comportant des fonctions trigonométriques hyperboliques peut être remplacée par le terme :

$$f_c = \frac{2}{1+\sqrt{\mu}} [1 - \exp(-2n\pi\alpha)] \times [1 + (r-1)\exp(-2n\pi\alpha)], \quad A5.7$$

$$\text{avec } r = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{\sqrt{\mu}}\right).$$

Cette approximation a été obtenue par un développement limité du logarithme du rapport du terme exact sur le terme approché f_k .

En utilisant cette approximation, la somme infinie dans l'expression de l'énergie démagnétisante peut être exprimée comme une combinaison de fonction polylogarithmique $Li_n(z)$:

$$e_d(m, \alpha) = m^2 + \frac{2}{\pi^3 \alpha r} \left[\zeta(3) - Li_3(e^{-2\pi\alpha}) + \text{Re}\left(Li_3(-e^{-2\pi\alpha - i\pi m}) - Li_3(-e^{-i\pi m})\right) \right] \\ + \frac{2(r-1)}{\pi^3 \alpha r} \left[Li_3(e^{-2\pi\alpha}) - Li_3(e^{-2\pi(r+1)\alpha}) + \text{Re}\left(Li_3(-e^{-2\pi(1+r)\alpha}) - Li_3(-e^{-2\pi\alpha - i\pi m})\right) \right] \quad A5.8$$

$$\text{avec } Li_n(z) = \sum_{p=1}^{\infty} \frac{z^p}{p^n} \text{ et } \zeta(s) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^s} \text{ (fonction Zeta).}$$

L'énergie totale, comprenant l'énergie de paroi, l'énergie démagnétisante et l'énergie du champ appliqué, peut alors s'exprimer en unités réduites :

$$e_t(m, \alpha, H_r) = 2 \frac{D_0 \alpha}{h \sqrt{\mu}} + e_d(m, \alpha) - 2m \cdot H_r \quad A5.9$$

2) Taille des domaines à l'équilibre et susceptibilité

Nous sommes intéressés par deux variables dans nos mesures : la taille des domaines magnétiques en champ nul d et la susceptibilité magnétique χ_r . Des expressions analytiques de ces deux variables peuvent être déduites de l'expression de l'énergie totale par l'intermédiaire d'une équation implicite.

Quand il n'y a pas de champ extérieur appliqué, l'aimantation moyenne est nulle et la taille des domaines peut être déduite de la minimisation de l'énergie :

$$\frac{D_0}{h} + \frac{\sqrt{\mu}}{2} \frac{\partial e_d(0, \alpha)}{\partial \alpha} = 0 \quad A5.10$$

avec $\alpha = \frac{h \sqrt{\mu}}{2d}$.

Cette équation est transcendante en α et elle ne peut être résolue analytiquement. Cependant, elle est suffisante pour établir la relation entre la taille des domaines et l'épaisseur, si la valeur de μ est connue avec une précision suffisante. On peut représenter d/h en fonction de D_0/h en utilisant α comme variable en entrée.

La susceptibilité peut être obtenue en différenciant l'équation d'équilibre :

$$d \left(\frac{\partial}{\partial m} e_t(m, \alpha, H_r) \right) = \frac{\partial^2 e_t}{\partial m \partial m} dm + \frac{\partial^2 e_t}{\partial m \partial \alpha} d\alpha + \frac{\partial^2 e_t}{\partial m \partial H_r} dH_r = 0 \quad A5.11$$

En remarquant que les composantes de e_t dépendantes de α sont des fonctions paires de la variable m , nous concluons que $\left(\partial^2 e_t / \partial m \partial \alpha \right)_{m=0} = 0$.

Alors, la susceptibilité en unités réduites peut s'exprimer par la relation :

$$\chi_r = \left(\frac{\partial m}{\partial H_r} \right)_{m=0} = - \frac{\left(\partial^2 e_t / \partial m \partial H_r \right)_{m=0}}{\left(\partial^2 e_t / \partial m \partial m \right)_{m=0}} \quad A5.13$$

Comme dans le cas de la taille des domaines, la susceptibilité est une fonction transcendante en α et la courbe χ_r versus D_0/h peut être représentée paramétriquement en fonction de α .

Nous pouvons simplifier encore plus le problème. Nous avons représenté sur la figure A5.1, en échelle semi-logarithmique, la susceptibilité et le rapport de la taille des domaines sur l'épaisseur de la couche, en fonction de D_0/h , pour $\mu = 1.5$ (cette valeur est voisine de la valeur de μ pour les couches de FePd codéposées à 350°C). Quand le rapport d/h est plus grand que 1.5, une approximation linéaire peut être utilisée pour l'analyse

des données. Cette approximation est en fait valable dans le cas de l'échantillon FePd codéposé à 350°C. L'approximation linéaire peut être déduite analytiquement du développement en α de l'énergie magnétique et de l'équation d'équilibre. Alors, toute la courbe d'aimantation peut être exprimée dans une forme analytique simple.

La minimisation de e_t par rapport à m donne : $m = \frac{2}{\pi} \arctan\left(\frac{\sqrt{\mu}}{\alpha} H_r\right)$. A5.14

La minimisation par rapport à α conduit à : $\alpha = e^{-(\pi D_0/2h)-f(r)} \cos\left(\frac{\pi m}{2}\right)$. A5.15

En éliminant la variable α , nous obtenons l'expression de l'aimantation à l'équilibre en fonction du champ appliqué :

$$m = \frac{2}{\pi} \arcsin\left[e^{(\pi D_0/2h)+f(r)} \sqrt{\mu} H_r\right] = \frac{2}{\pi} \arcsin\left[\frac{\pi \chi_r(D_0/h, \mu)}{2} H_r\right] \quad \text{A5.16}$$

où χ_r est la susceptibilité en champ nul, incluant l'effet de μ :

$$\chi_r\left(\frac{D_0}{h}, \mu\right) = \frac{2\sqrt{\mu}}{\pi} e^{(\pi D_0/2h)+f(r)} \quad \text{A5.17}$$

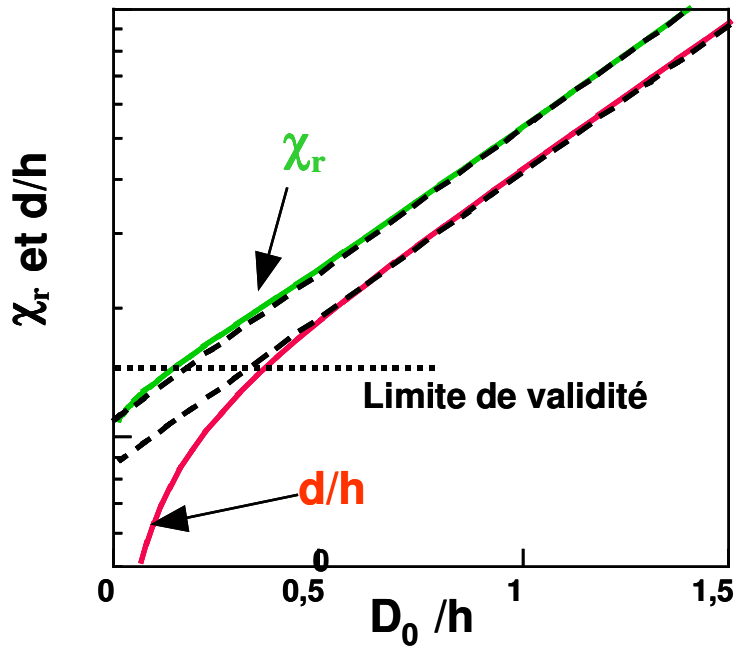


Fig. A5.1 : Susceptibilité (χ_r) et rapport de la taille des domaines (d) sur l'épaisseur de la couche (h), en fonction de la variable D_0/h , pour $\mu = 1.5$. Les courbes représentées en trait plein sont les solutions exactes résultant de la minimisation de l'énergie ; les droites représentées en pointillé sont des approximations linéaires de ces fonctions, valables dans le cas $\chi_r > 1.5$ ou $d/h > 1.5$.

Il apparaît que le logarithme de la susceptibilité et la taille des domaines en champ nul ont un comportement linéaire en fonction de l'inverse de l'épaisseur du film :

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + f(r) + \ln\left(\frac{\sqrt{\mu}}{2}\right) \approx \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(\pi) - 1 + \mu\left(\frac{1}{2} - \ln(2)\right) \quad A5.18$$

et

$$\ln(\chi_r) = \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + f(r) + \ln\left(\frac{2\sqrt{\mu}}{\pi}\right) \approx \frac{\pi D_0}{2} \frac{1}{h} + \ln(4) - 1 + \mu\left(\frac{1}{2} - \ln(2)\right) \quad A5.19$$

Nous retrouvons la dépendance linéaire prédite par Kaplan et Gehring [KAP 95]. Nous donnons ici une expression analytique de l'intersection de la droite avec l'axe de la taille des domaines, ainsi que la dépendance en μ qui n'a pas été obtenue auparavant. De plus, nous montrons que la susceptibilité magnétique suit le même comportement linéaire que le rapport de la taille des domaines à l'épaisseur de la couche mince. Ce résultat fournit une méthode rapide pour comparer les résultats expérimentaux obtenus par des techniques indépendantes. Une estimation de la validité des équations a été obtenue par une analyse numérique et nous concluons que l'erreur est négligeable quand $d/h > 1.5$.

Les calculs ont été effectués sur le logiciel Mathematica développé par Wolfram [WOL 91].

Annexe 6 - Liste des publications

- *Structure and magnetic properties of epitaxial ordered FePd (001) thin films.*

V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles.

Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 441 (1997) 409

- *Magnetic domains in epitaxial ordered FePd(001) thin films with perpendicular magnetic anisotropy.*

V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles, Y. Samson.

Phys. Rev. B 55, 18 (1997) 12552

- *Magnetic susceptibility and magnetic domain configuration as a function of the layer thickness in epitaxial FePd(001) thin films ordered in the L1₀ structure.*

V. Gehanno, Y. Samson, A. Marty, B. Gilles, A. Chamberod.

J. Magn. Magn. Mater. 172, 1-2 (1997) 26

- *Sensitivity of magnetic X-ray dichroism for chemical order in MBE-grown FePd layers.*

P. Kamp, M. Belakhovsky, C. Boeglin, H.A. Dürr, G. Van Der Laan, P. Schille, A. Rogalev, J. Goulon, V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles.

à paraître dans Physica B (1997)

- *Studies of epitaxial Fe_{0.5}Pd_{0.5} thin films by X-ray diffraction and polarized fluorescence absorption spectroscopy.*

V. Gehanno, C. Brizard, A. Marty, B. Gilles.

soumis à J. Appl. Phys.

- *Structural and magnetic properties of epitaxial Fe_{0.5}Pd_{0.5} thin films studied by Mössbauer Spectroscopy.*

V. Gehanno, P. Auric, A. Marty, B. Gilles.

soumis à J. Magn. Magn. Mater.

- *Shape instability in out-of equilibrium magnetic domains observed in ultrathin magnetic films with perpendicular anisotropy.*

R. Hoffmann, Y. Samson, A. Marty, V. Gehanno, B. Gilles.

soumis à Phys. Rev. Lett.

- *Measurement of magnetic domain wall widths in FePd and NdFeB by differential phase contrast imaging.*

P. Aitchinson, S. McVitie, J.N. Chapman, V. Gehanno, I.S. Weir, L. Folks

en préparation

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [BAR 94] Barbier L., Salanon B., Loiseau A.
Phys. Rev. B 50, 7 (1994) 4929
- [BEL 97a] Belliard L., Miltat J., Kottler V., Mathet V., Chappert C., Valet T.
J. Appl. Phys. 81, 8 (1997) 5315
- [BEL 97b] Belliard L., Thiaville A., Lemerle S., Lagrange A., Ferré J., Miltat J.
J. Appl. Phys. 81, 8 (1997) 3849
- [BLA 92] Bland J.A.C., Bateson R.D., Heinrich B., Celinski Z., Lauter H.J.
J. Magn. Magn. Mater. 104-107 (1992) 1909
- [BOB 67] Bobeck A.H.
Bell Sys. Tech. J. 46, 8 (1967) 1901
- [BOC 95] Bochi G., Hug H.J., Paul D.I., Stiefel B., Moser A., Parashikov I.,
Güntherodt H.-J., O'Handley R.C.
Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 1839
- [BRU 96] Brug J.A., Anthony T.C., Nickel J.
MRS Bulletin (Sept 1996) 23
- [BUS 83] Buschow K.H.J., Van Engen P.G., Jongebreur R.
J. Magn. Magn. Mater. 38 (1983) 1
- [CAB 65] Cable J.W., Wallen E.O., Koehler W.C.
Phys. Rev. 138A, (1965) 755
- [CAP 71] Cape J.A., Lehman G.W.
J. Appl. Phys. 42, 13 (1971) 5732
- [CAR 85] Carcia P.F., Meinhaldt A.D., Suna A.
Appl. Phys. Lett. 47, 2 (1985) 178
- [CEB 94] Cebollada A., Weller D., Sticht J., Harp G.R., Farrow R.F.C.,
Marks R.F., Savoy R., Scott J.C.
Phys. Rev. B 50, 5 (1994) 3419
- [CEL 91a] Celinski Z., Heinrich B.
J. Magn. Magn. Mater. 99 (1991) L25
- [CEL 91b] Celinski Z., Heinrich B., Cochran J.F.
J. Appl. Phys. 70, 10 (1991) 5870
- [CHA 86] Chappert C., Le Dang K., Beauvillain P., Hurdequint H., Renard D.
Phys. Rev. B 34, 5 (1986) 3192

- [CHA 88] Chang T.H.P., Kern D.P., Kratschmer E., Lee K.Y., Luhn H.E., McCord A., Richton S.A., Vladimirovsky Y.
IBM J. Res. Dev. 32 (1988) 462
- [CHE 83] Cheong B., Laughlin D.E.
Scripta Metall. Mater. 29 (1993) 829
- [CHE 89] Chen H., Brener N.E., Callaway J.
Phys. Rev. B 40, 3 (1989) 1443
- [CHI 64] Chikazumi S.
Physics of Magnetism (ed. J. Willey & Sons, Inc., 1964)
- [CHI 94] Childress J.R., Kergoat R., Durand O., George J.M., Galtier P., Miltat J., Schuhl A.
J. Magn. Magn. Mater. 130 (1994) 13
- [CLA 88] Clarke S., Vvedensky D.
J. Appl. Phys. 63, 7 (1988) 2272
- [CRO 97] Cros V., Petroff F., Vogel J., Fontaine A., Kappler J.P., Krill G., Rogalev A., Goulon J.
J. Appl. Phys. 81, 8 (1997) 3774
- [DAH 95] Dahlberg E.D., Zhu J.G.
Physics Today (Avril 1995) 34
- [DOB 87] Dobson P.J., Joyce B.A., Neave J.H., Zhang J.
J. Crystal Growth 81 (1987) 1
- [DOE 96] Doerner M.F., White R.L.
MRS Bulletin (Sept 1996) 28
- [DOR 75] Dorofeyev YU.A., Menshikov A.Z., Sidorov S.K.
Phys. Met. Metall. 40, 5 (1975) 64
- [DRU 73] Druyvesteyn W.F., Dorleijn J.W.F., Rijnierse P.J.
J. Appl. Phys. 44, 5 (1973) 2397
- [DUR 95] Durand O., Childress J.R., Galtier P., Bisaro R., Schuhl A.
J. Magn. Magn. Mater. 145 (1995) 111
- [DYN 96] Dynna M., Marty A., Gilles B., Patrat G.
Acta mater. 44, 1 (1996) 4417
- [DYN 97] Dynna M., Marty A., Gilles B., Patrat G.
Acta mater. 45, 1 (1997) 257
- [ESH 81] Eschenfelder A.H.
Magnetic Bubble Technology
(Springer Verlag Berlin Heidelberg New York 1981)

- [FAL 38] Fallot M.
Annales de Physique 10 (1938) 291
- [FIL 77] Fillon J., Calais D.
J. Phys. Chem. Solids 38 (1977) 81
- [FON 89] Fontaine A.
Techniques de l'ingénieur P2698 (1989)
- [FUL 95] Fullerton E., Stoeffler D., Ounadjela K., Heinrich B., Celinski Z.,
Bland J.
Phys. Rev. B 51, 10 (1995) 6364
- [GAR 91] Garcia N., Hernando A;
J. Magn. Magn. Mater. 99 (1991) L12
- [GRA 86] Gradmann U.
J. Magn. Magn. Mater. 54-57 (1986) 733
- [GRO 70] Gros Y., Paulevé J.
Le Journal de Physique 31 (1970) 459
- [GUR 84] Gurman S.J., Binsted N., Ross I.
J. Pgys. C : Solid State Physics 17 (1984) 143
- [GUS 87] Gushchin G.M., Berseneva F.N.
Phys. Met. Metall. 63, 5 (1987) 83
- [HEH 96a] Hehn M., Padovani S., Ounadjela K., Bucher J.P.
Phys Rev. B 54, 5 (1996) 3428
- [HEH 96b] Hehn M., Ounadjela K., Padovani S., Bucher J.P., Arabski J.,
Bardou N., Bartenlian B., Chappert C., Rousseaux F., Decanini D.,
Carcenac F., Cambril E., Ravet M.F.
J. Appl. Phys. 79, 8 (1996) 5068
- [HEI 91] Heinrich B., Celinski Z., Cochran J.F., Arrott A.S., Myrtle K.
J. Appl. Phys. 70, 10 (1991) 5769
- [HIC 94] Hicken R.J., Ives A.J.R., Eley D.E.P., Darboo C.,
Bland J.A.C., Childress J.R., Schuhl A.
Phys. Rev. B 50, 9 (1994) 6143
- [HSU 79] Hsu Y., Jen S., Berger L.
J. Appl. Phys. 50 (1979) 1907
- [HSU 83] Hsu Y., Schmidt J.E., Gupta M., Jen S., Berger L.
J. Appl. Phys. 54, 4 (1983) 1887
- [HUG 96] Hug H.J., Stiefel B., Moser A., Parashikov I., Klicznik A., Lipp D.,
Güntherodt H.-J., Bochi G., Paul D.I., O'Handley R.C.
J. Appl. Phys. 79, 8 (1996) 5609

- [INT 68a] International Tables for X-Ray Crystallography, volume 3
Atomic Scattering Factors for X-rays
(Lonsdale, 2nde édition, 1968) p. 201-216
- [INT 68b] International Tables for X-Ray Crystallography, volume 3
Thermal Vibration and Zero-point Energy
(Lonsdale, 2nde édition, 1968) p. 232-246
- [JOH 74] Johnson P.B., Christy R.W.
Phys. Rev. B 9, 12 (1974) 5056
- [JOH 90] Johnson W.C., Martin G.
J. Appl. Phys. 68, 3 (1990) 1252
- [KAC 63] Kaczer J., Zeleny M., Suda P.
Czech. J. Phys. B13 (1963) 579
- [KAC 64] Kaczer J.
Soviet Physics JETP 19, 5 (1964) 1204
- [KAP 93] Kaplan B., Gehring G.A.
J. Magn. Magn. Mater. 128 (1993) 111
- [KIM 62] Kimura R., Nose H.
J. Phys. Soc. Japan 17, sup. B1 (1962) 604
- [KIT 46] Kittel C.
Phys. Rev. 70, 11-12 (1946) 965
- [KLE 95] Klemmer T., Hoydick D., Okumura H., Zhang B., Soffa W.A.
Scripta Met. Mater. 33, 10-11 (1995) 1793
- [KNI 55] Knight J.R., Rhodes E.C.
Revue de Métallurgie LII, 7 (1955) 518
- [KOO 60] Kooy C., Enz U.
Philips Res. Repts. 15 (1960) 7
- [KRI 68] Krinchik G.S., Artem'ev V.A.
Soviet Physics JETP 26 (1968) 1080
- [KRY 96] Kryger M.H.
MRS Bulletin (Sept 1996) 17
- [KUA 88] Kuang J.P., Kontani M., Matsui M., Adachi K.
Physica B149 (1988) 209
- [KUB 82] Kubaschewski O.
Iron Binary Phase Diagrams (Springer Verlag ed. N.Y., 1982)
- [KUS 62] Kussman A., Jessen K.
J. Phys. Soc. Japan 17, BI (1962) 136

- [KUS 63] Kussman A., Jessen K.
Zeitschrift of Metallkunde 54 (1963) 504
- [KUS 64] Kussman A., Müller K.
Z. Angew. Phys. 17 (1964) 509
- [LAI 93] Lairson B.M., Visokay M.R., Sinclair R., Clemens B.M.
J. Magn. Magn. Mater. 126 (1993) 577
- [LAM 96] Lambeth D.N., Velu E.M.T., Bellesis G.H., Lee L.L., Laughlin D.E.
J. Appl. Phys. 79, 8 (1996) 4496
- [LEC 95] Le Cann X., Boeglin C., Carrière B.
Journées Surface-Interfaces (Dijon, 1995)
- [LEE 89] Lee C.H., Hui H.E., Lamelas F., Vavra W., Huher C., Clarke R.
Phys. Rev. Lett. 62, 6 (1989) 653
- [LEE 90] Lee C.H., Farrow R.F.C., Lin C.J., Marinero E.E., Chien C.J.
Phys. Rev. B 42, 17 (1990) 11 384
- [LIU 88] Liu C., Moog E.R., Bader S.D.
Phys. Rev. Lett. 60, 23 (1988) 2422
- [LOD 95] Lodder J.C.
MRS Bulletin (Oct 1995) 59
- [LON 68] Longworth G.
Phys. Rev. 172, 2 (1968) 572
- [MAG 68] Magat L.M., Yermolenko A.S., Ivanova G.V., Makorova G.M.,
Shur Y.A.S.
Phys. Met. Metall. 26, 3 (1968) 132
- [MAH 90] Mahan J.E., Geib K.M., Robinson G.Y., Long R.G.
J. Vac. Sci. Technol. A 8, 5 (1990) 3692
- [MAR 97] Maret M., Cadeville M.C., Poinot R., Herr A., Beaurepaire E.,
Monier C.
J. Magn. Magn. Mater. 166 (1997) 45
- [MAT 80] Matsui M., Shimizu T., Yamada H., Adachi K.
J. Magn. Magn. Mater. 15-18 (1980) 1201
- [MAT 83] Matsui M., Shimizu T., Adachi K.
Physica 119B (1983) 84
- [MCI 97] McIntyre P.C., Wu D.T., Nastasi M.
J. Appl. Phys. 81, 2 (1997) 637
- [MEZ 82] Mezey L.Z., Giber J.
Jap. J. Appl. Phys. 21, 11 (1982) 1569

- [MIT 95] Mitani S., Takanashi K., Sano M., Fujimori H., Osawa A., Nakajima H.
J. Magn. Magn. Mater. 148 (1995) 163
- [MIT 96] Mitani S., Takanashi K., Nakajima H., Sato K., Schreiber R., Grünberg P., Fujimori H.
J. Magn. Magn. Mater. 156 (1996) 7
- [MIT 97] Mitani S., Takanashi K., Shigemoto Y., Fujimori H.
à paraître dans Jap. J. Appl. Phys.
- [MIY 86a] Miyata N., Tomotsune K., Nakada H., Hagiwara M., Kadomatsu H., Fujiwara H.
J. Phys. Soc. Japan 55, 3 (1986) 946
- [MIY 86b] Miyata N., Hagiwara M., Kunitomo H., Ohishi S., Ichiyanagi Y., Kuwahara K., Tsuru K., Kadomatsu H., Fujiwara H.
J. Phys. Soc. Japan 55, 3 (1986) 953
- [MIY 86c] Miyata N., Kaminori T., Goto M.
J. Phys. Soc. Japan 55, 6 (1986) 2037
- [MIY 90] Miyata N., Asami H., Mizushima T.
J. Phys. Soc. Japan 59, 5 (1990) 1817
- [MOR 89] Moruzzi V.L., Marcus P.M.
Phys. Rev. B 39, 1 (1989) 471
- [MUR 66] Murayama Y
J. Phys. Soc. Japan 21, 11 (1966) 2253
- [NEA 83] Neave J.H., Joyce B.A., Dobson P.J., Norton N.
Appl. Phys. A31 (1983) 1
- [NEE 83] Neema F., Prival G.
Techniques de l'Ingénieur H1500a (1983)
- [ONO 96] Onodera S., Kondo H., Kawana T.
MRS Bulletin (Sept 1996) 35
- [OPP 92a] Oppeneer P.M., Maurer T., Sicht J., Kübler J.
Phys. Rev. B 45, 19 (1992) 10924
- [OPP 92b] Oppeneer P.M., Sicht J., Maurer T., Kübler J.
Z. Phys. B - Condensed Matter 88 (1992) 309
- [OSH 81] Oshima R., Kosuga K., Sugiyama M., Fujita F.E.
Proc. Inter. Conf. on the application of the Mössbauer effect
Jaipur-India (1981) 510
- [OST 94] Osterloh I., Oppeneer P.M., Sticht J., Kübler J.
J. Phys : Condens. Matter 6 (1994) 285
- [PEA 64] Pearson W.B.

- Handbook of lattice spacings and structures of metals
(Pergamon Press, ed. G.V. Raynor, revised edition 1964)
- [PRO 95] Prost B.
Techniques de l'Ingénieur E5450 (1995) 30
- [QUI 91] Quinn J., Li H., Tian D., Jona F., Marcus P.M.
Phys. Rev. B 43, 5 (1991) 3959
- [RAD 93] Rader O., Carbone C., Clemens W., Vescovo E., Blügel S.,
Eberhardt W., Gudat W.
Surface Science 287-288 (1993) 736
- [RAU 63] Raub E., Beeskov H., Loebich O.
Zeitschrift of Metallkunde 54 (1963) 549
- [REI 91] Reim W., Brandle H., Weller D., Schoenes J.
J. Magn. Magn. Mater. 93 (1991) 220
- [ROU 92] Rousseaux F.
Annales de Physique, colloque n°1, supplément au n°3, 17 (1992)
- [SAK 85] Sakamoto T., Funabashi H., Ohta K., Nakagawa T., Kawai N.J.,
Kojima T., Bando Y.
Superlattices and Microstructures 1, 4 (1985) 347
- [SCH 84] Schmidt J.E., Berger L.
J. Appl. Phys. 55, 4 (1984) 1073
- [SHO 48] Shockley W.
Phys. Rev. 73 (1948) 1246
- [SIM 95] J.L. Simonds
Physics Today (April 1995) 26
- [STA 87] P.A. Stadelmann
Ultramicroscopy 21 (1987) 131
- [STE 88] Stern E.A.
Theory of EXAFS, X-ray Absorption Principles, Applications,
Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES, Chapter I
(ed. Köningsberger and Prins, New York 1988)
- [STO 94] Stoeffler D., Ounadjela K., Sticht J., Gautier F.
Phys. Rev. B 49, 1 (1994) 299
- [SUG 92] Sugimoto T., Katayama T., Suzuki Y., Hashimoto M., Nishihara Y., Itoh
A., Kawanishi K.
J. Magn. Magn. Mater. 104-107 (1992) 1845
- [SUG 93] Sugimoto T., Katayama ., Suzuki Y., Koide T., Sidara T., Yuri M.,
Itoh A., Kawanishi K.

- Phys. Rev. B 48, 22 (1993) 16 432
- [SUK 97] Sukstanskii A.L., Primak K.I.
J. Magn. Magn. Mater. 169 (1997) 31
- [SUZ 96] Suzuki T.
MRS Bulletin (Sept 1996) 42
- [TAK 95] Takanashi K., Mitani S., Sano M., Fujimori H., Nakajima H., Osawa A.
Appl. Phys. Lett. 67, 7 (1995) 1016
- [TSU 76a] Tsurin V.A., Yurchikov E.E., Menshikov A.Z.
Sov. Phys. Solid State 17, 10 (1976) 1942
- [TSU 76b] Tsurin V.A., Ermakov A.E., Lebedev Y.G., Filippov B.N.
Phys. Stat. Sol. A 33 (1976) 325
- [TYS 96] Tyson T.A., Conradson S.D., Farrow R.F.C., Jones B.A.
Phys. Rev. B 54, 6 (1996) R3702
- [VIL 85] Villars P., Calvert L.D.
Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases
(Metals Park Oh 44073, American Society for Metals, 1985)
- [WAR 90] Warren B.E.
X-ray diffraction (Dover Publications, New York, 1990), p. 206-250
- [WEB 96] Weber W., Back C.H., Bischof A., Würsch Ch., Allenspach R.
Phys. Rev. Lett. 76, 11 (1996) 1940
- [WEL 92] Weller D., Brandle H., Gorman G., Lin C.J., Notarys H.
Appl. Phys. Lett. 61 (1992) 2726
- [WOL 91] Wolfram S.
Mathematica (2nd édition, Wolfram Research Inc., Champaign, IL, 1991)
- [WOW 89] Wowchak A.M., Kuznia J.N., Cohen P.I.
J. Vac. Sci. Technol. B 7, 4 (1989) 733
- [YER 90] Yermakov A.YE., Maykov V.V.
Phys. Met. Metall 69, 5 (1990) 198
- [ZEP 89] Zeper W.B., Greidanus F.J.A.M., Garcia P.F., Fincher C.R.
J. Appl. Phys. 65, 12 (1989) 4971
- [ZHA 92] Zhang B., Soffa W.A.
Phys. Stat. Sol. A 131 (1992) 707
- [ZHA 94] Zhang B., Soffa W.A.
Scripta Met. Mater. 30, 6 (1994) 683

RESUME

Nous avons étudié l'anisotropie magnétique perpendiculaire résultant de la mise en ordre chimique de type L1₀, dans des couches minces d'alliage FePd élaborées en Epitaxie par Jets Moléculaires. Différentes procédures d'élaboration ont été mises en oeuvre :

- la codéposition à température ambiante, éventuellement suivie d'un recuit ;
- la codéposition à 350°C ;
- le dépôt alterné de couches atomiques Fe et Pd, contrôlé par le temps de dépôt ou par les oscillations RHEED.

La structure des alliages a été étudiée par Microscopie Electronique en Transmission. Nous avons caractérisé l'ordre à longue distance (OLD) par diffraction des rayons X, et l'ordre à courte distance directionnel (OCDD) par spectroscopie EXAFS. L'anisotropie magnétique uniaxiale a été évaluée à partir de mesures de magnétométrie (VSM). Nous montrons que l'OLD et l'OCDD, de même que l'anisotropie magnétique, dépendent fortement des conditions de dépôt. Le degré d'ordre chimique le plus élevé est obtenu par la codéposition de l'alliage à 350°C : dans ce cas, l'aimantation est orientée suivant la direction perpendiculaire au plan des couches minces et l'étude par Microscopie à Force Magnétique révèle la présence de domaines magnétiques, dont la taille latérale est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. L'anisotropie magnétique résultant du dépôt alterné de couches atomiques est plus faible : pour les faibles épaisseurs, l'aimantation est dans le plan de la couche et au delà d'une épaisseur critique, elle sort du plan, faisant apparaître une configuration en rubans. Nous avons interprété, par des modèles analytiques de micromagnétisme, l'évolution de la susceptibilité en champ perpendiculaire, ainsi que celle de la taille des domaines et des rubans, en fonction de l'épaisseur des couches minces. Nous avons également réalisé des expériences de spectroscopie Mössbauer et spectroscopie Kerr polaire : nous montrons que ces deux signaux sont très sensibles au degré d'ordre des alliages.

MOTS CLES

FePd

Micromagnétisme

Ordre chimique

Anisotropie magnétique

Epitaxie par Jets Moléculaires (EJM)

Microscopie à Force Magnétique (MFM)